

**JP1998289786A**

**1998-10-27**

**Bibliographic Fields**

**Document Identity**

(19)【発行国】

日本国特許庁(JP)

(12)【公報種別】

公開特許公報(A)

(11)【公開番号】

特開平10-289786

(43)【公開日】

平成10年(1998)10月27日

(19) [Publication Office]

Japan Patent Office (JP)

(12) [Kind of Document]

Unexamined Patent Publication (A)

(11) [Publication Number of Unexamined Application]

Japan Unexamined Patent Publication Hei 10 - 289786

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

1998 (1998) October 27 days

**Public Availability**

(43)【公開日】

平成10年(1998)10月27日

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

1998 (1998) October 27 days

**Technical**

(54)【発明の名称】

有機エレクトロルミネッセンス素子材料およびそれを使用した有機エレクトロルミネッセンス素子

(54) [Title of Invention]

**ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT MATERIAL AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT WHICH USES THAT**

(51)【国際特許分類第6版】

H05B 33/22

C09K 11/06

H05B 33/14

【FI】

H05B 33/22

C09K 11/06 Z

H05B 33/14

【請求項の数】

6

【出願形態】

OL

【全頁数】

28

(51) [International Patent Classification, 6th Edition]

H05B 33/22

C09K 11/06

H05B 33/14

[FI]

H05B 33/22

C09K 11/06 Z

H05B 33/14

[Number of Claims]

6

[Form of Application]

OL

[Number of Pages in Document]

28

**Filing**

【審査請求】

未請求

[Request for Examination]

Unrequested

**JP1998289786A**

**1998-10-27**

(21)【出願番号】

特願平9-95406

(22)【出願日】

平成9年(1997)4月14日

(21) [Application Number]

Japan Patent Application Hei 9 - 95406

(22) [Application Date]

1997 (1997) April 14 days

**Parties**

**Applicants**

(71)【出願人】

【識別番号】

000222118

【氏名又は名称】

東洋インキ製造株式会社

【住所又は居所】

東京都中央区京橋2丁目3番13号

(71) [Applicant]

[Identification Number]

000222118

[Name]

**TOYO INK MFG. CO. LTD. (DB 69-055-2930 )**

[Address]

Tokyo Prefecture Chuo-ku Kyobashi 2-3-13

**Inventors**

(72)【発明者】

【氏名】

奥津 聡

【住所又は居所】

東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋インキ製造株式会社内

(72) [Inventor]

[Name]

Okutsu Satoshi

[Address]

Inside of Tokyo Prefecture Chuo-ku Kyobashi 2-3-13 Toyo Ink Mfg. Co. Ltd. (DB 69-055-2930 )

(72)【発明者】

【氏名】

玉野 美智子

【住所又は居所】

東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋インキ製造株式会社内

(72) [Inventor]

[Name]

Tamano Michiko

[Address]

Inside of Tokyo Prefecture Chuo-ku Kyobashi 2-3-13 Toyo Ink Mfg. Co. Ltd. (DB 69-055-2930 )

(72)【発明者】

【氏名】

鬼久保 俊一

【住所又は居所】

東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋インキ製造株式会社内

(72) [Inventor]

[Name]

Ogre Kubo Shun-ichi

[Address]

Inside of Tokyo Prefecture Chuo-ku Kyobashi 2-3-13 Toyo Ink Mfg. Co. Ltd. (DB 69-055-2930 )

(72)【発明者】

【氏名】

榎田 年男

【住所又は居所】

(72) [Inventor]

[Name]

Enokida Toshio

[Address]

JP1998289786A

1998-10-27

東京都中央区京橋二丁目3番13号 東洋インキ製造株式会社内

Inside of Tokyo Prefecture Chuo-ku Kyobashi 2-3-13 Toyo Ink Mfg. Co. Ltd. (DB 69-055-2930 )

**Abstract**

(57)【要約】

**【課題】**

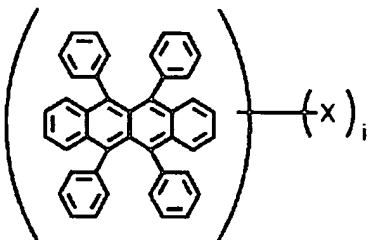
高輝度・高発光効率、発光劣化が少なく信頼性の高いエレクトロルミネッセンス素子材料、および有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

**【解決手段】**

一般式[1]からなる有機エレクトロルミネッセンス素子材料およびそれを使用した有機エレクトロルミネッセンス素子。

一般式[1]

【化 1】



[式中 X は、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、シクロアルキル基、複素環基、アミノ基を表す。i は 1~28 の整数を表し、それぞれの X は同一でも異なるものであってもよい。]

**Claims**

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式[1]で示される有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

一般式[1]

【化 1】

(57) [Abstract]

[Problems to be Solved by the Invention]

high brightness \* high light emission efficiency、light emission degradation to be little offers electroluminescent element material、and organic electroluminescent element where reliability is high.

[Means to Solve the Problems]

organic electroluminescent element material which consists of General Formula [1] and organic electroluminescent element、which usesthat

General Formula [1]

[Chemical Formula 1]

[X in Formula displays halogen atom、cyano group、alkyl group、aryl group、alkoxy group、aryloxy group、alkyl thio group、aryl thio group、cycloalkyl group、heterocyclic group、amino group. i displays integer 1 - 28, respective X being same,may be something which differs. ]

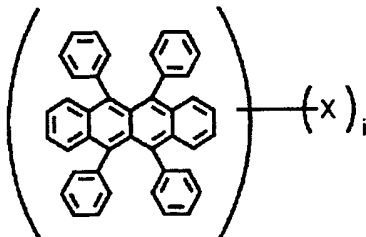
[Claim(s)]

[Claim 1]

organic electroluminescent element material、which is shown with below-mentioned General Formula [1]

General Formula [1]

[Chemical Formula 1]



[式中 X は、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは未置換のアルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、置換もしくは未置換のアルコキシ基、置換もしくは未置換のアリールオキシ基、置換もしくは未置換のアルキルチオ基、置換もしくは未置換のアリールチオ基、置換もしくは未置換のシクロアルキル基、置換もしくは未置換の複素環基、置換もしくは未置換のアミノ基を表す。i は 1-28 の整数を表し、それぞれの X は同一でも異なるものであってもよい。]

#### 【請求項 2】

一对の電極間に少なくとも発光層と正孔注入層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、該正孔注入層が請求項 1 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層である有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 【請求項 3】

一对の電極間に少なくとも発光層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層が請求項 1 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層である有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 【請求項 4】

発光層がホスト物質とドーピング材料とからなり、該ドーピング材料が上記一般式[1]で表される有機エレクトロルミネッセンス素子材料である請求項 3 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 【請求項 5】

発光層と陽極との間に正孔注入層を形成することを特徴とする請求項 3 または 4 記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 【請求項 6】

発光層と陰極との間に電子注入層を形成することを特徴とする請求項 5 記載の有機エレクトロ

[X in Formula displays halogen atom, cyano group, substituted or unsubstituted alkyl group, substituted or unsubstituted aryl group, substituted or unsubstituted alkoxy group, substituted or unsubstituted aryloxy group, substituted or unsubstituted alkyl thio group, substituted or unsubstituted aryl thio group, substituted or unsubstituted cycloalkyl group, substituted or unsubstituted heterocyclic group, substituted or unsubstituted amino group. i displays integer 1 - 28, respective X being same, may be something which differs. ]

#### 【Claim 2】

organic electroluminescent element, which is a layer which contains organic electroluminescent element material which said positive hole-injecting layer states in Claim 1 in organic electroluminescent element which formed organic compound thin film of multiple layers which at least includes luminescent layer and positive hole-injecting layer between pair of electrodes

#### 【Claim 3】

organic electroluminescent element, which is a layer which contains organic electroluminescent element material which said luminescent layer states in Claim 1 in organic electroluminescent element which formed organic compound thin film of multiple layers which at least includes luminescent layer between pair of electrodes

#### 【Claim 4】

luminescent layer consists of host substance and dopant, organic electroluminescent element, which is stated in Claim 3 where said dopant is above-mentioned General Formula [1] and is organic electroluminescent element material which is displayed

#### 【Claim 5】

positive hole-injecting layer is formed between luminescent layer and anode organic electroluminescent element, which is stated in Claim 3 or 4 which is made feature

#### 【Claim 6】

electron-injecting layer is formed between luminescent layer and cathode organic electroluminescent element, which

ルミネッセンス素子。

## Specification

### 【発明の詳細な説明】

#### 【0001】

#### 【産業上の利用分野】

本発明は平面光源や表示に使用される有機エレクトロルミネッセンス(EL)素子に関するものである。

#### 【0002】

#### 【従来の技術】

有機物質を使用した EL 素子は、固体発光型の安価な大面積フルカラー表示素子としての用途が有望視され、多くの開発が行われている。

一般に EL は、発光層および該層をはさんだ一対の対向電極から構成されている。

発光は、両電極間に電界が印加されると、陰極側から電子が注入され、陽極側から正孔が注入される。

さらに、この電子が発光層において正孔と再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出する現象である。

#### 【0003】

従来の有機 EL 素子は、無機 EL 素子に比べて駆動電圧が高く、発光輝度や発光効率も低かった。

また、特性劣化も著しく実用化には至っていなかった。

近年、10V 以下の低電圧で発光する高い蛍光量子効率を持った有機化合物を含有した薄膜を積層した有機 EL 素子が報告され、関心を集めている(アプライド・フィジクス・レターズ、51 巻、913 ページ、1987 年参照)。

この方法では、金属キレート錯体を蛍光体層、アミン系化合物を正孔注入層に使用して、高輝度の緑色発光を得ており、6~7V の直流電圧で輝度は 100cd/m<sup>2</sup>、最大発光効率は 1.5lm/W を達成して、実用領域に近い性能を持っている。

しかしながら、現在までの有機 EL 素子は、構成

is stated in Claim 5 which is made feature

### [Description of the Invention]

#### [0001]

#### [Field of Industrial Application]

this invention is something regarding organic electroluminescence (EL) element which is used for planar light source and indication.

#### [0002]

#### [Prior Art]

electroluminescent element which uses organic substance is promising is considered that the application as inexpensive large surface area full color display element of solid light-emitting type many developments are done.

Generally EL is formed from counterelectrode of pair which put between luminescent layer and said layer.

As for light emitting, when electric field imparting is done between both electrodes, electron is filled from cathode side, positive hole is filled from the anode side.

Furthermore, this electron positive hole and recombination it does in luminescent layer, it is a phenomena which discharges energy occasion where energy level returns to valence electron band from conduction band as light.

#### [0003]

As for conventional organic electroluminescent element, drive voltage was high in comparison with inorganic electroluminescent element, also light emitting brightness and light emission efficiency were low.

In addition, either property degradation had not reached to utilization considerably.

organic electroluminescent element which laminates thin film which contains organic compound which had high fluorescence quantum efficiency where recently, light emitting it does with low voltage of 10 V or less is reported, gathers interest (Applied Physics Letters, Vol.51, 913 page, 1987 reference).

With this method, metal chelate complex using phosphor layer, amine type compound for positive hole-injecting layer, we obtain green color light emitting of high brightness, as for brightness as for 100 cd/m<sup>2</sup>, maximum light emission efficiency achieving 1.5 lm/W, we have performance which is close to practical domain with direct current voltage of 6 - 7 V.

But, to presently as for organic electroluminescent element, as

の改善により発光強度は改良されているが、未だ十分な発光輝度は有していない。

また、繰り返し使用時の安定性に劣るという大きな問題を持っている。

【0004】

有機 EL 素子の発光効率を向上させるために、発光層を発光材料であるホスト物質にゲスト物質をドーピングして作製する技術が開示されている。

例えば、発光層中にトリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム錯体をホスト物質に、クマリン色素もしくは DCM 色素を蛍光性ゲスト物質としてドーピングした有機 EL 素子(ジャーナル・オブ・アプライドフィジクス、65 巻、3610 ページ、1989 年参照)があるが、これらの有機 EL 素子の発光効率は十分ではなかった。

また、発光層中に N, N'-ジフェニル-N, N'-(3-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミンをホスト物質に、ルブレンを蛍光性ゲスト物質としてドーピングした有機 EL 素子が開示されている(ジャパニーズ・ジャーナル・オブ・アプライドフィジクス、34 巻、L824 ページ、1995 年参照)。

しかしながら、これらの有機 EL 素子の初期発光効率は向上しているが、連続して発光させた場合の劣化が著しく、実用上大きな問題があった。

これは、発光層に少量の蛍光性ゲスト物質をドーピングする技術が困難なこと、および、開示されたルブレン化合物では、分子同士が強固に凝集しているために、発光層中へ均一にドーピングすることが困難である。

このような理由から、発光層中へ均一にドーピングすることが容易な蛍光性ゲスト材料、および、より高い発光効率を持ち、繰り返し使用時の安定性の優れた有機 EL 素子の開発が望まれているのが現状である。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、発光効率が高く、繰り返し使用時の安定性の優れた有機 EL 素子の提供にある。

for light emission intensity it is improved by improvement of constitution, but it has not possessed satisfactory light emitting brightness yet.

In addition, it has large problem that it is inferior to stability at time of repetitive use.

【0004】

In order to improve, technology which dope doing ゲス jp7 substance in host substance which is a light-emitting material produces luminescent layer has been disclosed the light emission efficiency of organic electroluminescent element.

tris (8-hydroxy quinoline) aluminum complex in host substance, there is a organic electroluminescent element (journal \* of \* Applied physics, 6 Vol.5, 3610 page, 1989 reference) which dope is done, in for example luminescent layer with coumarin dye or DCM color element as fluorescence ゲス jp7 substance, but light emission efficiency of these organic electroluminescent element was not fully.

In addition, N, N'-biphenyl-N, N'- (3-methylphenyl) -1 and 1'-biphenyl-4, 4'-diamine in host substance, organic electroluminescent element which doping is done is disclosed in luminescent layer with rubrene as fluorescence ゲス jp7 substance, (Japanese \* journal \* of \* Applied physics, Vol.34, L824 page, 1995 reference).

But, initial stage light emission efficiency of these organic electroluminescent element has improved, but continuing, there was a problem where deterioration when light emitting it does is considerable, in regard to utility is large.

As for this, technology which fluorescence ゲス jp7 substance of trace the doping is done is difficult in luminescent layer, and, with rubrene compound which is disclosed, because molecule has cohered firm, to in luminescent layer the doping it makes in uniform, it is difficult.

From this kind of reason, to in luminescent layer doping it does in the uniform, fact that development of organic electroluminescent element where stability at the time of repetitive use is superior with easy fluorescence ゲス jp7 material, and a higher light emission efficiency, is desired in present state.

【0005】

[Problems to be Solved by the Invention]

As for objective of this invention, light emission efficiency is high, there is offer of organic electroluminescent element where stability at time of repetitive use is superior.

本発明者らが鋭意検討した結果、一般式[1]で示される化合物の少なくとも一種の有機 EL 素子材料を正孔注入層もしくは発光層に使用した有機 EL 素子の発光効率が高く、繰り返し使用時での安定性も優れていることを見だし本発明に至った。

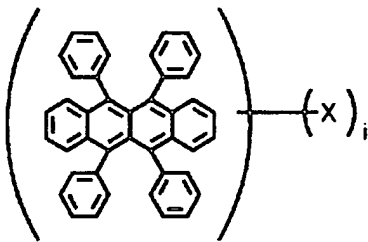
【0006】

【課題を解決するための手段】

即ち、本発明は、下記一般式[1]で示される有機エレクトロルミネッセンス素子材料である。

一般式[1]

【化 2】



[式中 X は、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは未置換のアルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、置換もしくは未置換のアルコキシ基、置換もしくは未置換のアリールオキシ基、置換もしくは未置換のアルキルチオ基、置換もしくは未置換のアリールチオ基、置換もしくは未置換のシクロアルキル基、置換もしくは未置換の複素環基、置換もしくは未置換のアミノ基を表す。i は 1~28 の整数を表し、それぞれの X は同一でも異なるものであってもよい。]

【0007】

更に本発明は、一対の電極間に少なくとも発光層と正孔注入層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、該正孔注入層が上記有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層である有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【0008】

更に本発明は、一対の電極間に少なくとも発光層を含む複数層の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層が上記有機エレクトロルミネッセンス素子材料を含有する層である有機エレクトロルミ

these inventors result of diligent investigation, organic electroluminescent element material of at least one kind of compound which is shown with General Formula [1] light emission efficiency of organic electroluminescent element which is used for positive hole-injecting layer or luminescent layer is high, also stability at time of the repetitive use is superior you discovered and reached to this invention.

【0006】

[Means to Solve the Problems]

Namely, this invention is organic electroluminescent element material which is shown with below-mentioned General Formula [1].

General Formula [1]

[Chemical Formula 2]

[X in Formula displays halogen atom, cyano group, substituted or unsubstituted alkyl group, substituted or unsubstituted aryl group, substituted or unsubstituted alkoxy group, substituted or unsubstituted aryloxy group, substituted or unsubstituted alkyl thio group, substituted or unsubstituted aryl thio group, substituted or unsubstituted cycloalkyl group, substituted or unsubstituted heterocyclic group, substituted or unsubstituted amino group. i displays integer 1 - 28, respective X being same, may be something which differs. ]

【0007】

Furthermore this invention is organic electroluminescent element which is a layer where said positive hole-injecting layer contains above-mentioned organic electroluminescent element material in organic electroluminescent element which formed organic compound thin film of multiple layers which at least includes luminescent layer and positive hole-injecting layer between pair of electrodes.

【0008】

Furthermore this invention is organic electroluminescent element which is a layer where said luminescent layer contains above-mentioned organic electroluminescent element material in organic electroluminescent element which formed organic compound thin film of multiple layers which at least

ネッセンス素子である。

【0009】

更に本発明は、発光層がホスト物質とドーピング材料とからなり、該ドーピング材料が上記一般式[1]で表される有機エレクトロルミネッセンス素子材料である上記有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【0010】

更に本発明は、発光層と陽極との間に正孔注入層を形成することを特徴とする上記有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【0011】

更に本発明は、発光層と陰極との間に電子注入層を形成することを特徴とする上記有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【発明の実施の形態】

本発明において、一般式[1]で表されるiは1~28までの整数を表し、Xは同一でも異なるものであってもよい。

【0012】

本発明における一般式[1]で表される化合物のXはそれぞれ独立に、ハロゲン原子、シアノ基、置換もしくは未置換のアルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、置換もしくは未置換のアルコキシ基、置換もしくは未置換のアリールオキシ基、置換もしくは未置換のアルキルチオ基、置換もしくは未置換のアリールチオ基、置換もしくは未置換のシクロアルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、置換もしくは未置換の複素環基、置換もしくは未置換のアミノ基を表す。

ハロゲン原子の具体例としては、

塩素、

臭素、

ヨウ素、

フッ素があり、

アルキル基の具体例としては、

メチル基、

エチル基、

プロピル基、

ブチル基、

sec-ブチル基、

includes luminescent layer between pair of electrodes.

【0009】

Furthermore as for this invention, luminescent layer consists of host substance and the dopant, it is an above-mentioned organic electroluminescent element where said dopant is the above-mentioned General Formula [1] and is organic electroluminescent element material which is displayed.

【0010】

Furthermore this invention forms positive hole-injecting layer is above-mentioned organic electroluminescent element which is made feature between luminescent layer and anode.

【0011】

Furthermore this invention forms electron-injecting layer is above-mentioned organic electroluminescent element which is made feature between luminescent layer and cathode.

【Embodiment of the Invention】

Regarding to this invention, i which is displayed with General Formula [1] displays integer up to 1 - 28, X being same, may be something which differs.

【0012】

X of compound which is displayed with General Formula [1] in the this invention in respective independence, displays halogen atom, cyano group, substituted or unsubstituted alkyl group, substituted or unsubstituted aryl group, substituted or unsubstituted alkoxy group, substituted or unsubstituted aryloxy group, substituted or unsubstituted alkyl thio group, substituted or unsubstituted aryl thio group, substituted or unsubstituted cycloalkyl group, substituted or unsubstituted aryl group, substituted or unsubstituted heterocyclic group, substituted or unsubstituted amino group.

As embodiment of halogen atom,

chlorine,

bromine,

iodine,

There is a fluorine,

As embodiment of alkyl group,

methyl group,

ethyl group,

propyl group,

butyl group,

s-butyl group,



tert-ブチル基、

ペンチル基、

ヘキシル基、

ヘプチル基、

オクチル基、

ステアリル基、

トリクロロメチル基等があり、

アルコキシ基の具体例としては、

メトキシ基、

エトキシ基、

n-ブトキシ基、

tert-ブトキシ基、

トリクロロメトキシ基、

トリフルオロエトキシ基、ペンタフルオロプロポキシ基、2,2,3,3-テトラフルオロプロポキシ基、1,1,1,3,3,3-ヘキサフルオロ-2-プロポキシ基、6-(パーフルオロエチル)ヘキシルオキシ基等があり、アリーロキシ基の具体例としては、フェノキシ基、p-ニトロフェノキシ基、p-tert-ブチルフェノキシ基、3-フルオロフェノキシ基、ペンタフルオロフェニル基、3-トリフルオロメチルフェノキシ基等があり、アルキルチオ基の具体例としては、メチルチオ基、エチルチオ基、tert-ブチルチオ基、ヘキシルチオ基、オクチルチオ基、トリフルオロメチルチオ基等があり、アリールチオ基の具体例としては、フェニルチオ基、p-ニトロフェニルチオ基、p-tert-ブチルフェニルチオ基、3-フルオロフェニルチオ基、ペンタフルオロフェニルチオ基、3-トリフルオロメチルフェニルチオ基等があり、シクロアルキルの具体例としては、シクロペンタン環、シクロヘキサン環等があり、アリール基としては、フェニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、フルオレニル基、ピレニル基等があり、複素環基としては、ピロール基、ピロリン基、ピラゾール基、ピラゾリン基、イミダゾール基、トリアゾール基、ピリジン基、ピリダジン基、ピリミジン基、ピラジン基、トリアジン基、インドール基、プリン基、キノリン基、イソキノリン基、シノリン基、キノキサリン基、ベンゾキノリン基、フルオレノン基、カルバゾール基、オキサゾール基、オキサジアゾール基、チアゾール基、チアジアゾール基、トリアゾール基、イミダゾール基、ベンゾオキサゾール基、ベンゾチアゾール基、ベンゾトリアゾール基、ベンゾイミダゾール基、ビスベンゾオキサゾール基、ビスベンゾチアゾール基、ビスベ

t- butyl basis,

pentyl group,

hexyl group,

heptyl group,

octyl group,

stearyl group,

There is a trichloromethyl group etc,

As embodiment of alkoxy group,

methoxy group,

ethoxy group,

n- butoxy group,

t- butoxy group,

trichloro methoxy group,

There to be a trifluoro ethoxy group, penta fluoro propoxy group, 2,2,3, 3- tetrafluoro propoxy group, 1,1,1,3,3, 3- hexafluoro -2- propoxy group, 6- (perfluoro ethyl ) hexyloxy group, etc there be a phenoxy group, p- nitro phenoxy group, p- t- butylphenoxy group, 3- fluorophenoxy group, pentafluorophenyl group, 3- trifluoromethyl phenoxy group etc as embodiment of aryloxy group, embodiment of alkyl thio group て, there be a methylthio group, ethyl thio group, t- butyl thio group, hexylthio group, octyl thio group, trifluoromethyl thio basis etc, embodiment of aryl thio group て, a phenylthio group, p- nitrophenyl thio basis, a p- t- butyl phenylthio group, 3- fluorophenyl thio basis and a pentafluorophenyl thio basis, 3 -trifluoromethyl phenylthio group etc to be, as embodiment of cycloalkyl, There is a cyclopentane ring, cyclohexane ring, etc there is a phenyl group, biphenyl group, terphenyl group, naphthyl group, anthryl group, phenanthryl group, fluorenyl group, pyrenyl group etc as aryl group, there is a pyrrole group, pyrroline basis, a pyrazole basis, a pyrazoline basis, a imidazole group, triazole group, pyridine group, pyridazine group, pyrimidine group, pyrazine group, triazine group, indole group, purine basis, a quinoline group, isoquinoline basis, a cinnoline basis, a quinoxaline basis, a benzo quinoline group, fluorenone basis, a carbazole group, oxazole group, oxadiazole basis, a thiazole radical, thiadiazole group, triazole group, imidazole group, benzoxazole group, benzothiazole group, benzotriazole group, benzimidazole group, screw benzoxazole group, screw benzothiazole group, screw benzimidazole group, anthrone basis, a dibenzofuran basis, a dibenzothiophene basis, a anthraquinone basis, a acridone basis, a phenothiazine basis and a pyrrolidine group, dioxane group, morpholine group etc as heterocyclic group, As embodiment of amino

ンゾイミダゾール基、アントロン基、ジベンゾフラン基、ジベンゾチオフェン基、アントラキノン基、アクリドン基、フェノチアジン基、ピロリジン基、ジオキサソ基、モルフォリン基等があり、アミノ基の具体例としては、アミノ基、メチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジプロピルアミノ基、ジブチルアミノ基、ジフェニルアミノ基等のモノまたはジ置換アミノ基、ビス(アセトキシメチル)アミノ基、ビス(アセトキシエチル)アミノ基、ビスアセトキシプロピル)アミノ基、ビス(アセトキシブチル)アミノ基等がある。

また、上記のアリール基、複素環基は置換基を有してもよい。

【0013】

上記の X のアリール基、

複素環基への置換基として具体的な例を挙げると、

塩素、

臭素、

ヨウ素、

フッ素のハロゲン原子、

メチル基、

エチル基、

プロピル基、

ブチル基、

sec-ブチル基、

tert-ブチル基、

ペンチル基、

ヘキシル基、

ヘプチル基、

オクチル基、

ステアリル基、

トリクロロメチル基等の置換もしくは未置換のアルキル基、

ベンジル基、

$\alpha$ -メチルベンジル基、

$\alpha, \alpha'$ -ジメチルベンジル基等の置換もしくは未置換のベンジル基、

フェニル基、

ナフチル基、

group, there is a amino group, methylamino group, diethyl amino base, a ethylamino group, diethyl aminobase, a dipropyl amino group, dibutyl amino group, diphenylamino group or other mono- or disubstituted amino base and a screw (acetoxy methyl ) amino group, screw (acetoxy ethyl ) amino group, screw acetoxy propyl)amino group, screw (acetoxy butyl) amino group etc.

In addition, above-mentioned aryl group, heterocyclic group may possess substituent.

【0013】

aryl group、 of above-mentioned X

When concrete example is listed as substituent to heterocyclic group,

chlorine、

bromine、

iodine、

halogen atom、 of fluorine

methyl group、

ethyl group、

propyl group、

butyl group、

s-butyl group、

t-butyl basis、

pentyl group、

hexyl group、

heptyl group、

octyl group、

stearyl group、

trichloromethyl group or other substituted or unsubstituted alkyl group、

benzyl group、

$\alpha$ -methylbenzyl group、

$\alpha$  and  $\alpha'$ -dimethyl benzyl basic or other substituted or unsubstituted benzyl group、

phenyl group、

naphthyl group、

3-メチルフェニル基、	3 -methyl phenyl group、
3-メトキシフェニル基、	3 -methoxyphenyl group、
3-フルオロフェニル基、	3 -fluorophenyl group、
3-トリクロロメチルフェニル基、	3 -trichloromethyl phenyl group、
3-トリフルオロメチルフェニル基、	3 -trifluoromethyl phenyl group、
3-ニトロフェニル基等の置換もしくは未置換のアリール基、	3 -nitrophenyl group or other substituted or unsubstituted aryl group、
トキシ基、	jp7 キシ basis、
n-ブトキシ基、	n- butoxy group、
tert-ブトキシ基、	t- butoxy group、
トリクロロメトキシ基、	trichloro methoxy group、
トリフルオロエトキシ基、	trifluoro ethoxy group、
ペンタフルオロプロポキシ基、	penta fluoro propoxy group、
2,2,3,3-テトラフルオロプロポキシ基、	2, 2, 3 and 3 -tetrafluoro propoxy group、
1,1,1,3,3,3-ヘキサフルオロ-2-プロポキシ基、	1, 1, 1, 3, 3 and 3 -hexafluoro -2- propoxy group、
6-(パーフルオロエチル)ヘキシルオキシ基等の置換もしくは未置換のアルコキシ基、	6 - (perfluoro ethyl ) hexyloxy group or other substituted or unsubstituted alkoxy group、
フェノキシ基、	phenoxy group、
p-ニトロフェノキシ基、	p- nitro phenoxy group、
p-tert-ブチルフェノキシ基、	p- t- butylphenoxy group、
3-フルオロフェノキシ基、	3 -fluorophenoxy group、
ペンタフルオロフェニル基、	pentafluorophenyl group、
3-トリフルオロメチルフェノキシ基等の置換もしくは未置換のアリールオキシ基、	3 -trifluoromethyl phenoxy group or other substituted or unsubstituted aryloxy group、
メチルチオ基、	methylthio group、
エチルチオ基、	ethyl thio group、
tert-ブチルチオ基、	t- butyl thio group、
ヘキシルチオ基、	hexylthio group、
オクチルチオ基、	octyl thio group、
トリフルオロメチルチオ基等の置換もしくは未置換のアルキルチオ基、	trifluoromethyl thio basic or other substituted or unsubstituted alkyl thio group、
フェニルチオ基、	phenylthio group、
p-ニトロフェニルチオ基、	p- nitrophenyl thio basis、
p-tert-ブチルフェニルチオ基、	p- t- butyl phenylthio group、
3-フルオロフェニルチオ基、	3 -fluorophenyl thio basis、
ペンタフルオロフェニルチオ基、	pentafluorophenyl thio basis、

3-トリフルオロメチルフェニルチオ基等の置換もしくは未置換のアリールチオ基、

シアノ基、ニトロ基、アミノ基、メチルアミノ基、ジエチルアミノ基、エチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジプロピルアミノ基、ジブチルアミノ基、ジフェニルアミノ基等のモノまたはジ置換アミノ基、ビス(アセトキシメチル)アミノ基、ビス(アセトキシエチル)アミノ基、ビスアセトキシプロピル)アミノ基、ビス(アセトキシブチル)アミノ基等のアシルアミノ基、水酸基、シロキシ基、アシル基、メチルカルバモイル基、ジメチルカルバモイル基、エチルカルバモイル基、ジエチルカルバモイル基、ブロピルカルバモイル基、ブチルカルバモイル基、フェニルカルバモイル基等のカルバモイル基、カルボン酸基、スルホン酸基、イミド基、シクロペンタン基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基、フェニル基、トリル基、ナフチル基、ピフェニル基、o,m,p-ターフェニル基、アントラニル基、フェナントレン基、フルオレニル基、9-フェニルアントラニル基、9,10-ジフェニルアントラニル基、ピレニル基等のアリール基、ピロール基、ピロリン基、ピラゾール基、ピラゾリン基、イミダゾール基、トリアゾール基、ピリジン基、ピリダジン基、ピリミジン基、ピラジン基、トリアジン基、インドール基、プリン基、キノリン基、イソキノリン基、シノリン基、キノキサリン基、ベンゾキノリン基、フルオレノン基、ジシアノフルオレン基、カルバゾール基、オキサゾール基、オキサジアゾール基、チアゾール基、チアジアゾール基、トリアゾール基、イミダゾール基、ベンゾオキサゾール基、ベンゾチアゾール基、ベンゾトリアゾール基、ベンゾイミダゾール基、ビスベンゾオキサゾール基、ビスベンゾチアゾール基、ビスベンゾイミダゾール基、アントロン基、ジベンゾフラン基、ジベンゾチオフェン基、アントラキノ基、アクリドン基、フェノチアジン基、ピロリジン基、ジオキササン基、ピペリジン基、モルフォリン基、ピペラジン基等の複素環基、フェニルサルフォン基、メチルサルフォン基、エチルサルフォン基、ビフェニルサルフォン基等のフェニルサルフォン基、アセチル基、メチルアセチル基、フェニルアセチル基、メチルフェニルアセチル基等の置換もしくは未置換のアセチル基、イソシアニル基、フェニルイソシアニル基等の置換もしくは未置換のイソシアニル基、ステリル基、メチルステリル基、フェニルステリル基等の置換もしくは未置換のステリル基等がある。

[0014]

本発明において、一般式[1]で表される化合物は、ナフトキノ誘導体に、グリニヤール試薬を反応させ、さらに還元して得られた化合物に、リ

3-trifluoromethyl phenylthio group or other substituted or unsubstituted aryl thio group、

cyano group、nitro group、amino group、methylamino group、diethyl amino base、ethylamino group、diethyl amino base and dipropyl amino group、dibutyl amino group、diphenylamino group or other mono- or disubstituted amino base、screw (acetoxymethyl) amino group、screw (acetoxylethyl) amino group、screw acetoxypentyl)amino group、screw (acetoxypentyl) amino group or other acyl amino group、hydroxy group、siloxy group、acyl group、methyl carbamoyl group、dimethyl carbamoyl group、ethyl carbamoyl group、diethyl carbamoyl group、professional I pyr carbamoyl group、butyl carbamoyl group、phenyl carbamoyl group or other carbamoyl group、carboxylic acid group、sulfonic acid group、imido group、cyclopentane basis、cyclohexyl group or other cycloalkyl group、phenyl group、tolyl group、naphthyl group、biphenyl group、o,m,p-terphenyl group、anthranyl group、phenanthrenyl group、fluorenyl group、9-phenyl anthranyl group、9,10-biphenyl anthranyl group、pyrenyl group or other aryl group、pyrrole group、pyrroline basis、pyrazole basis、pyrazoline basis、imidazole group、triazole group、pyridine group、pyridazine group、pyrimidine group、pyrazine group、triazine group、indole group、purine basis、quinoline group、isoquinoline basis、cinnoline basis、quinoxaline basis、benzo quinoline group、fluorenone basis、di cyano fluorene group、carbazole group、oxazole group、oxadiazole basis、thiazole radical、thiadiazole group、triazole group、imidazole group、benzoxazole group、benzothiazole group、benzotriazole group、benzimidazole group、screw benzoxazole group、screw benzothiazole group、screw benzimidazole group、anthrone basis、dibenzofuran basis、dibenzothiophene basis、anthraquinone basis、acridone basis、phenothiazine basis and pyrrolidine group、dioxane group、piperidine group、morpholine group、piperazine group or other heterocyclic group、phenyl sulfone basis、There is a methyl sulfone basis、a ethyl sulfone basis、a biphenyl sulfone basic or other phenyl sulfone basis、a acetyl group、methyl acetyl group、phenyl acetyl group、methylphenyl acetyl group or other substituted or unsubstituted acetyl group、iso Xia ニル basis、a phenyl iso Xia ニル basic or other substituted or unsubstituted iso Xia ニル basis and a styryl group、methyl styryl group、phenyl styryl group or other substituted or unsubstituted styryl group etc.

[0014]

Regarding to this invention, as for compound which is displayed with the General Formula [1], Grignard reagent reacting to naphthoquinone derivative, furthermore reducing,

JP1998289786A

1998-10-27

チオ化試薬を反応させさらに還元する方法 (J. Am. Chem. Soc., 58 巻、937 ページ、1936 年)、または、ジアリールベンゾフランに、ナフトキノ誘導体を反応させて得られた化合物に、グリニヤール試薬を反応させさらに還元する方法 (Compt. rend., 207 巻、585 ページ、1938 年)等により、合成することができる。

【0015】

以下に、本発明の化合物の代表例を表 1 に具体的に例示するが、本発明は以下の代表例に限定されるものではない。

【0016】

【表 1】

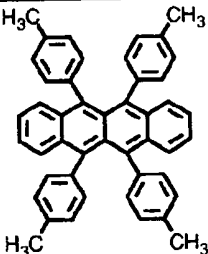
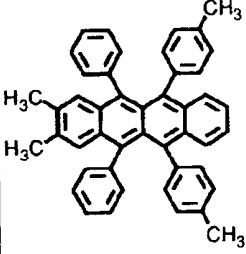
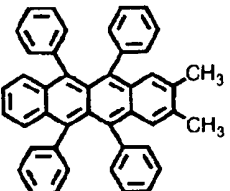
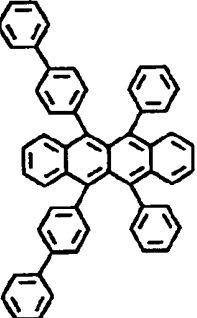
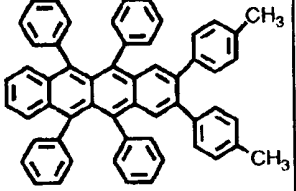
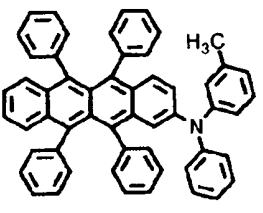
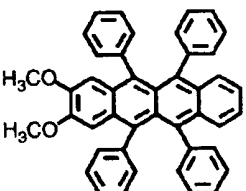
in compound which it acquires, method which reacting, furthermore reduces lithium conversion reagent (Journal of the American Chemical Society (0002 - 7863, JACSAT ), Vol.58, 937 page, 1936 year), or, in diaryl benzofuran, in compound which reacting, acquires naphthoquinone derivative, in method (Compt. rend., 20 Vol.7, 585 page, 1938 year) etc which reacting, furthermore reduces Grignard reagent depending, It can synthesize.

[0015]

Below, representative example of compound of this invention is illustrated to Table 1 concretely, but this invention is not something which is limited in the representative example below.

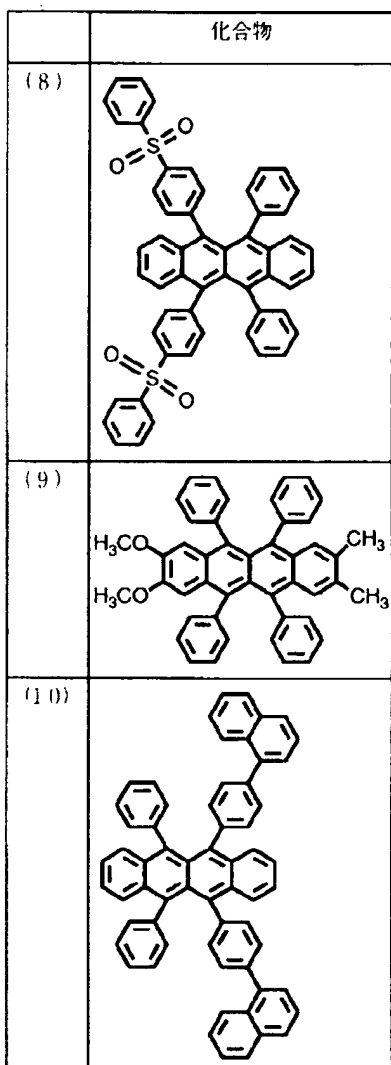
[0016]

[Table 1]

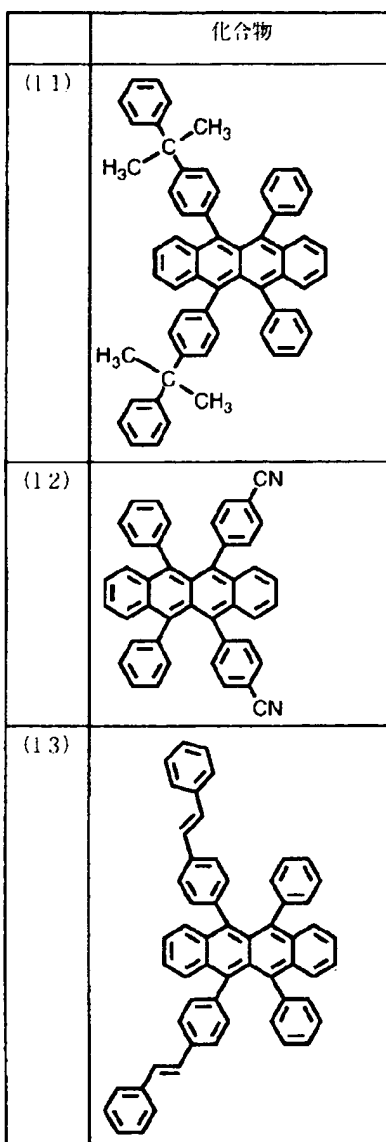
	化合物		化合物
(1)		(5)	
(2)		(6)	
(3)		(7)	
(4)			

【0017】

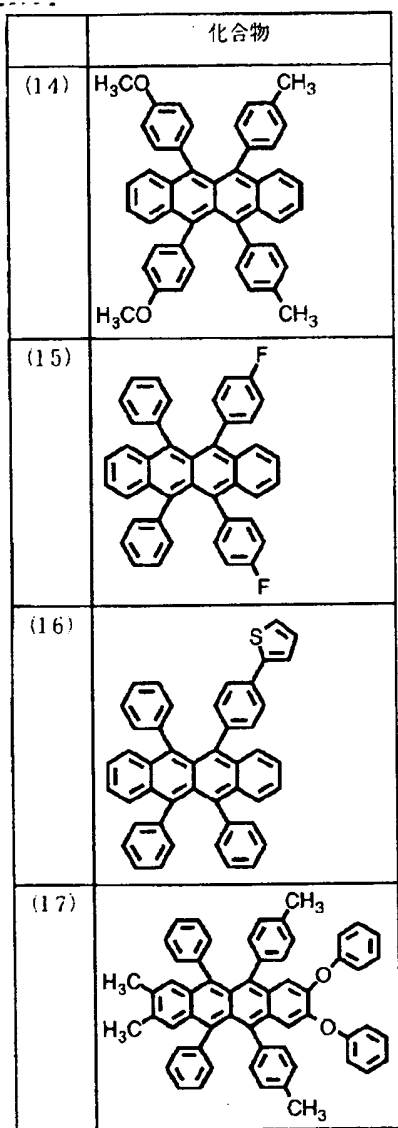
[0017]



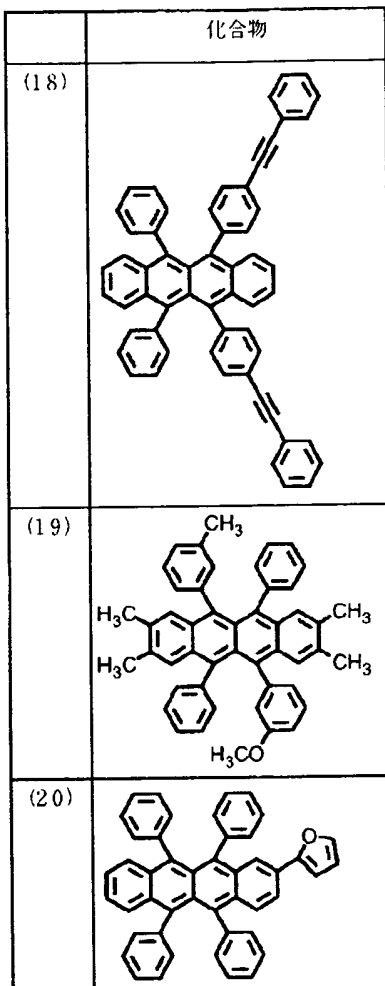
【0018】



[0018]



【0019】



【0019】



	化合物		化合物
(21)		(24)	
(22)		(25)	
(23)		(26)	

## 【0020】

有機EL素子は、陽極と陰極間に一層もしくは多層の有機薄膜を形成した素子である。

一層型の場合、陽極と陰極との間に発光層を設けている。

発光層は、発光材料を含有し、それに加えて陽極から注入した正孔もしくは陰極から注入した電子を発光材料まで輸送させるために正孔注入材料もしくは電子注入材料を含有しても良い。

多層型は、(陽極/正孔注入層/発光層/陰極)、(陽極/発光層/電子注入層/陰極)、(陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極)の多層構成で

## [0020]

organic electroluminescent element is element which formed organic thin film of single layer or multilayer between the anode and cathode.

In case of single layer type, luminescent layer is provided between anode and the cathode.

luminescent layer contains light-emitting material, is good containing positive hole-injecting material or the electron implantation material in order to transport electron which was filled from positive hole or cathode which were filled from anode in addition to that to light-emitting material.

multilayer type, (anode/positive hole-injecting layer/luminescent layer/cathode), (anode/luminescent layer/electron-injecting layer/cathode), is a organic

積層した有機 EL 素子がある。

この化合物は、ドーピング材料として発光層中にて最適の割合でドーピングすることにより、高い発光効率および発光波長の最適な選択が可能になった。

【0021】

発光層のホスト物質に、ドーピング材料(ゲスト物質)として一般式[1]の化合物を使用して、発光輝度が高い有機 EL 素子を得ることができる。

一般式[1]の化合物は、発光層内において、ホスト物質に対して 0.001 重量%~50 重量%の範囲で含有されていることが望ましく、更には 0.01 重量%~10 重量%の範囲が効果的である。

本発明の一般式[1]の化合物は、化学構造中に一般式[1]で規定したように、置換基が結合しているので、スピコート法等の湿式成膜法では、溶剤への溶解性が高く各層中で均一に存在させることが可能になった。

また蒸着等による乾式製膜法では、発光層中で発光材料にドーピングする際にも、置換基の存在が化合物同士の結晶化を防ぎ、発光層内に均一に存在させることが可能になり、それぞれの電極から注入されたキャリアが、発光層内で均一に再結合することが可能になり、高輝度、長寿命の有機 EL 素子を作製するために極めて効果的である。

【0022】

発光層には、発光材料およびドーピング材料に加えて、必要があれば正孔注入材料や電子注入材料を使用することもできる。

【0023】

有機 EL 素子は、多層構造にすることにより、クエンチングによる輝度や寿命の低下を防ぐことができる。

また、必要があれば、発光材料、ドーピング材料、キャリア注入を行う正孔注入材料や電子注入材料を二種類以上組み合わせて使用することも出来る。

また、正孔注入層、発光層、電子注入層は、それぞれ二層以上の層構成により形成されても良く、正孔もしくは電子が効率よく電極から注入され、層中で輸送される素子構造が選択される。

electroluminescent element which is laminated with multilayer constitution of the(anode/positive hole-injecting layer/luminescent layer/electron-injecting layer/cathode ).

As for this compound, optimum selection of high light emission efficiency and light emitting wavelength became possible in luminescent layer by doping doing at ratio of the optimum as dopant.

【0021】

Using compound of General Formula [1] for host substance of luminescent layer, dopant (ゲスト substance ) as, it can acquire organic electroluminescent element where light emitting brightness is high.

compound of General Formula [1] is contained in range of 0.001 weight%~50 weight% ininside luminescent layer, vis-a-vis host substance, it is desirable ,furthermore range of 0.01 weight%~10 weight% is effective.

Because as in chemical structure stipulated with General Formula [1], substituent hasconnected compound of General Formula [1] of this invention, with spin coating method or other wet type film-forming property, the solubility to solvent in each layer in uniform exists becamehighly possible.

In addition carrier where, when in luminescent layer doping doing in the light-emitting material even, existence of substituent prevents crystallization of compound with dry type film production method with such as vapor deposition, inside luminescent layer exists in uniform possible to become, was filled from respective electrode,inside luminescent layer recombination does in uniform, it becomes possible, It is a quite effective in order to produce organic electroluminescent element of high brightness、 long life.

【0022】

If, there is a necessity in luminescent layer in addition to light-emitting material and the dopant, it can also use positive hole-injecting material and electron implantation material.

【0023】

organic electroluminescent element prevents decrease of brightness and lifetime with the quenching by making multilayer structure, it is possible .

In addition, if there is a necessity, two kinds or more combining positive hole-injecting material and electron implantation material which do light-emitting material, dopant、 carrier injection, it can also use.

In addition, positive hole-injecting layer、 luminescent layer、 electron-injecting layer is good being formed due to layer configuration of therespective two layers or more, positive hole or electron are filled efficiently from electrode, element structure which is transported in layer is selected

## 【0024】

有機 EL 素子の陽極に使用される導電性材料は、4eV より大きな仕事関数を持つものが好適であり、炭素、アルミニウム、バナジウム、鉄、コバルト、ニッケル、タングステン、銀、金、白金、パラジウム等およびそれらの合金、ITO 基板、NESA 基板と称される酸化スズ、酸化インジウム等の酸化金属、さらにはポリチオフェンやポリピロール等の有機導電性樹脂が用いられる。

陰極に使用される導電性材料は、4eV より小さな仕事関数を持つものが好適であり、マグネシウム、カルシウム、錫、鉛、チタニウム、イットリウム、リチウム、ルテニウム、マンガン等およびそれらの合金が用いられるが、これらに限定されるものではない。

陽極および陰極は、必要があれば二層以上の層構成により形成されていても良い。

## 【0025】

有機 EL 素子では、効率良く発光させるために、少なくとも一方は素子の発光波長領域において充分透明であることが望ましい。

また、基板も透明であることが望ましい。

透明電極は、上記の導電性材料を使用して、蒸着やスパッタリング等の方法で所定の透光性を確保するように設定する。

発光面の電極は、光透過率を 10%以上にすることが望ましい。

基板は、機械的、熱的強度を有し、透明であれば限定されるものではないが、例示すると、ガラス基板、ポリエチレン板、ポリエーテルサルフォン板、ポリプロピレン板等の透明性樹脂があげられる。

## 【0026】

本発明に係わる有機 EL 素子の各層の形成は、真空蒸着、スパッタリング等の乾式成膜法やスピンコーティング、ディッピング等の湿式成膜法のいずれの方法を適用することができる。

膜厚は特に限定されるものではないが、各層は適切な膜厚に設定する必要がある。

structure which is transported in layer is selected.

## 【0024】

As for electrically conductive material which is used for anode of organic electroluminescent element, those which have work function which is larger than 4 eV being ideal, carbon, aluminum, vanadium, iron, cobalt, nickel, tungsten, silver, gold, platinum, palladium etc and tin oxide, indium oxide or other metal oxide, which is named those alloy, ITO substrate, NESgroup A boards furthermore it can use polythiophene and polypyrrole or other organic electrically conductive resin.

As for electrically conductive material which is used for cathode, those which have smaller work function than 4 eV being ideal, magnesium, calcium, tin, lead, titanium, yttrium, lithium, ruthenium, manganese etc and it can use those alloy, but it is not something which is limited in these.

anode and cathode, if there is a necessity, is good being formed by layer configuration of two layers or more.

## 【0025】

With organic electroluminescent element, in order light emitting to do efficiently, as for at least one it is a satisfactory transparent in light emitting wave length domain of element, it is desirable.

In addition, also substrate is transparent, it is desirable.

Using above-mentioned electrically conductive material, in order to guarantee predetermined translucent with vapor deposition and sputtering or other method, it sets transparent electrode.

electrode of light-emitting surface designates optical transmittance as 10% or more, it is desirable.

If substrate has mechanical, thermal strength and it is a transparent, it is not something which is limited. When it illustrates, it can increase glass substrate, polyethylene sheet, polyether sulfone sheet, polypropylene sheet or other transparent resin.

## 【0026】

Formation of each layer of organic electroluminescent element which relates to this invention can apply any method of vacuum vapor deposition, sputtering or other dry type film-forming property and spin coating, dipping or other wet type film-forming property.

film thickness is not something which especially is limited. As for each layer it is necessary to set to appropriate film thickness.

膜厚が厚すぎると、一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要になり効率が悪くなる。

膜厚が薄すぎるとピンホール等が発生して、電界を印加しても充分な発光輝度が得られない。

通常の膜厚は 5nm から 10  $\mu$  m の範囲が好適であるが、10nm から 0.2  $\mu$  m の範囲がさらに好ましい。

#### 【0027】

湿式成膜法の場合、各層を形成する材料を、クロロホルム、テトラヒドロフラン、ジオキサン等の適切な溶媒に溶解または分散して薄膜を形成するが、その溶媒はいずれであっても良い。

また、いずれの薄膜においても、成膜性向上、膜のピンホール防止等のため適切な樹脂や添加剤を使用しても良い。

このような樹脂としては、ポリスチレン、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル、ポリアミド、ポリウレタン、ポリスルフォン、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、セルロース等の絶縁性樹脂、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリシラン等の光導電性樹脂、ポリチオフェン、ポリピロール等の導電性樹脂を挙げることができる。

また、添加剤としては、酸化防止剤、紫外線吸収剤、可塑剤等を挙げることができる。

#### 【0028】

一般式[1]と併せて使用できるホスト物質としては、キノリン金属錯体、オキサジアゾール、ベンゾチアゾール金属錯体、ベンゾオキサゾール金属錯体、ベンゾイミダゾール金属錯体、トリアゾール、イミダゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、スチルベン、プタジエン、ベンジジン型トリフェニルアミン、スチリルアミン型トリフェニルアミン、ジアミン型トリフェニルアミンフルオレノン、ジアミノアントラセン型トリフェニルアミン、ジアミノフェナントレン型トリフェニルアミン、アントラキノジメタン、ジフェノキノ、チアジアゾール、テトラゾール、ペリレンテトラカルボン酸、フレオレニリデンメタン、アントラキノジメタン、トリフェニレン、アントロン等とそれらの誘導体、および、ポリビニルカルバゾール、ポリシラン等の導電性高分子の高分子材料等がある。

以下表 2 に具体的に例示するが、本発明は以下の代表例に限定されるものではない。

When film thickness is too thick, in order to obtain fixed light output the large applied voltage becomes necessary and efficiency becomes bad.

When film thickness is too thin, pinhole etc occurring, imparting doing electric field, satisfactory light emitting brightness is not acquired.

conventional film thickness range of 10  $\mu$  m is ideal from 5 nm, but range of 0.2  $\mu$  m furthermore is desirable from 10 nm.

#### 【0027】

In case of wet type film-forming property, material which forms each layer, in chloroform, tetrahydrofuran, dioxane or other appropriate solvent melting or dispersing, or it forms thin film, but solvent is good whichever.

In addition, regarding whichever thin film, because of pinhole prevention or other of film forming behavior improvement and film it is good using appropriate resin and additive.

As this kind of resin, polystyrene, polycarbonate, polyarylate, polyester, polyamide, polyurethane, polysulfone, polymethylmethacrylate, poly methyl acrylate, cellulose or other insulating property resin, poly N- vinyl carbazole, poly silane or other photoconductivity resin, polythiophene, polypyrrole or other electrically conductive resin can be listed.

In addition, antioxidant, ultraviolet absorber, plasticizer etc can be listed as additive.

#### 【0028】

quinoline metal complex, oxadiazole, benzothiazole metal complex, benzoxazole metal complex, benzimidazole metal complex, triazole, imidazole, oxazole, oxadiazole, stilbene, butadiene, benzidine type triphenyl amine, styryl amine type triphenyl amine, diamine type triphenyl amine fluorenone, diamino anthracene type triphenyl amine, diamino phenanthrene type triphenyl amine, anthraquinone G methane, the diphenylquinone, thiadiazole, tetrazole, perylene tetracarboxylic acid, fluorenylidene methane, anthraquinone G methane and triphenylene, anthrone etc there are those derivative, and a polymeric material etc of poly vinyl carbazole, poly silane or other conductive polymer General Formula [1] with as host substance which can be used together.

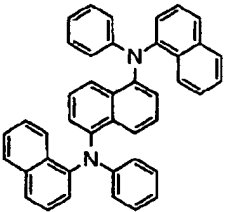
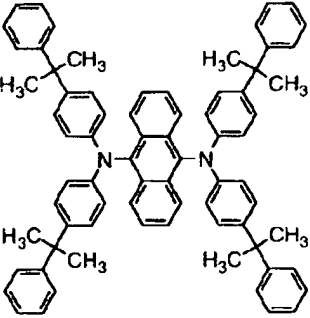
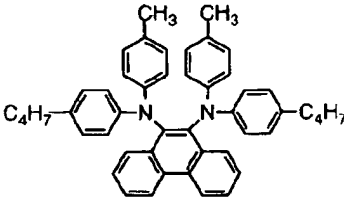
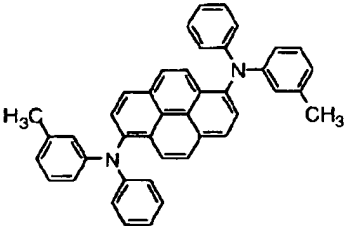
It illustrates to below Table 2 concretely, but this invention is not something which is limited in representative example below.

[0029]

[0029]

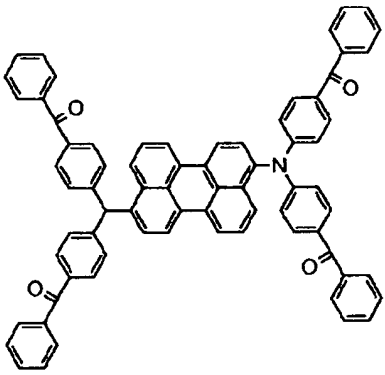
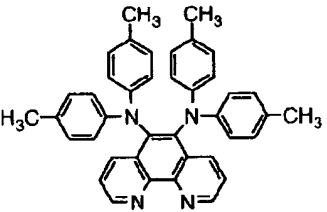
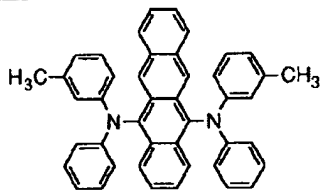
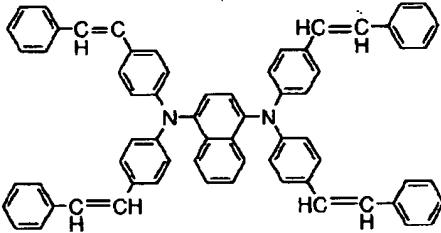
【表 2】

[Table 2]

A 1	
A - 2	
A 3	
A - 4	

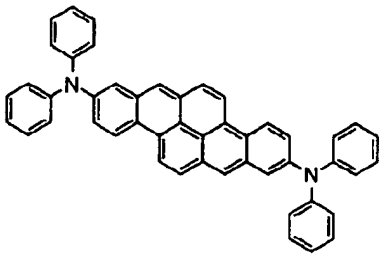
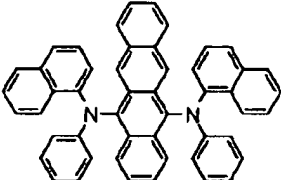
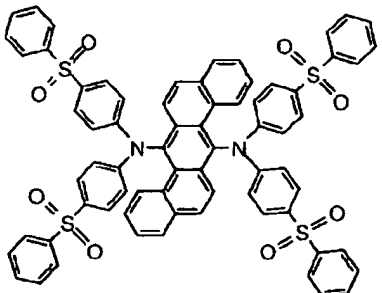
[0030]

[0030]

A - 5	
A - 6	
A - 7	
A - 8	

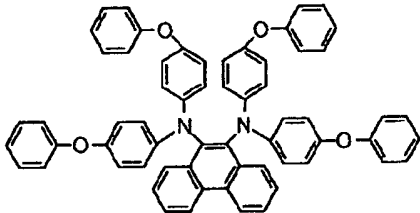
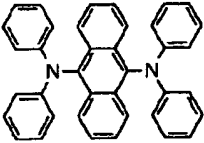
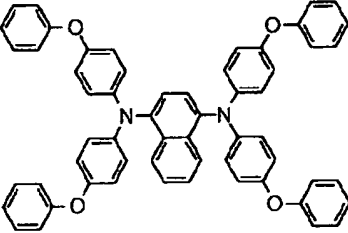
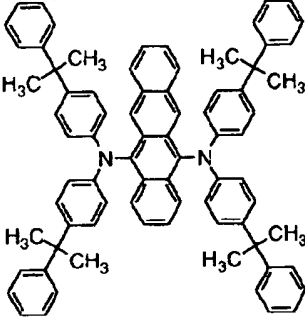
【0031】

[0031]

A - 9	 <chem>Nc1ccc(cc1)c2ccc3ccc4ccc5ccc6ccc7ccc8c2c3c4c5c6c7c8Nc9ccccc9</chem>
A 10	 <chem>c1ccc2cc3cc4c(cc2c1)N(c5ccccc5)c6ccc7ccccc67N(c8cc9ccccc89)c10cccc10</chem>
A - 11	 <chem>O=S(=O)(c1ccccc1)c2ccc(N3c4ccc5c6ccc7c8c3c4c5c6c7c8N(c9ccccc9)S(=O)(=O)c10ccccc10)cc2</chem>

【0032】

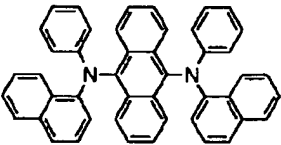
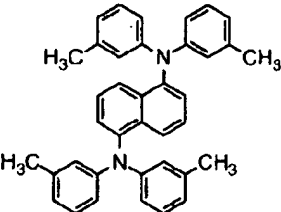
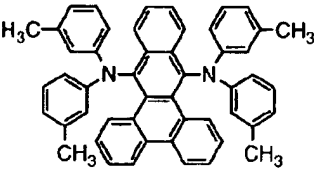
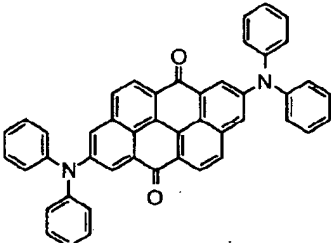
[0032]

A-12	
A-13	
A-14	
A-15	

[0033]

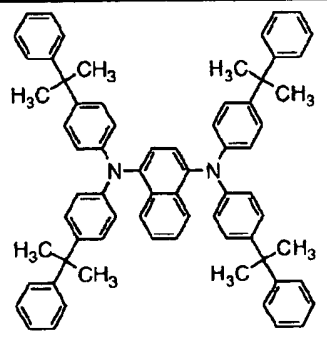
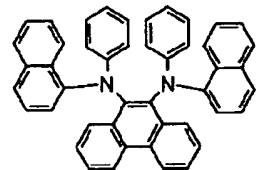
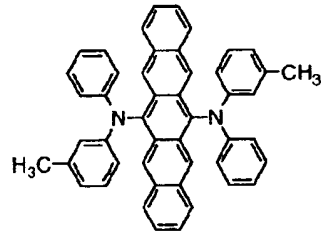
[0033]



A - 1 6	
A - 1 7	
A - 1 8	
A - 1 9	

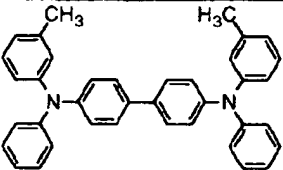
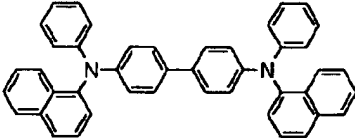
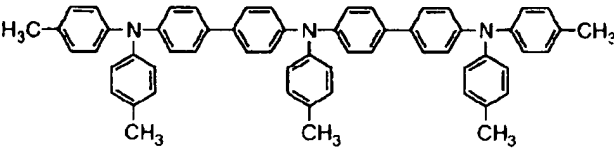
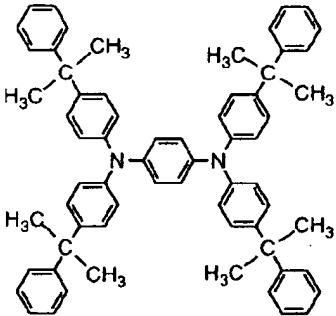
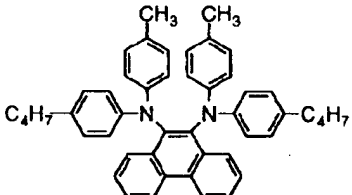
【0034】

[0034]

A - 2 0	
A - 2 1	
A - 2 2	

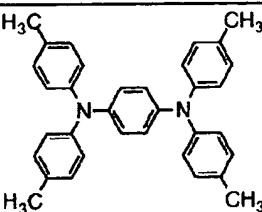
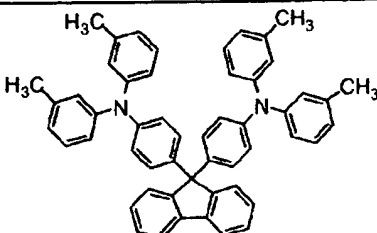
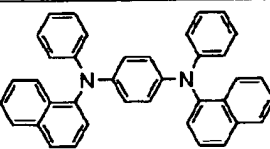
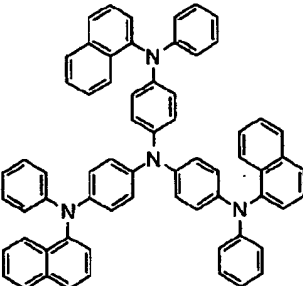
[0035]

[0035]

	化合物
A - 2 3	
A - 2 4	
A - 2 5	
A - 2 6	
A - 2 7	

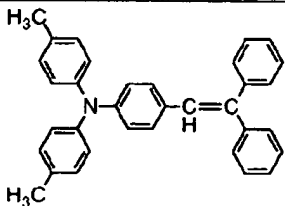
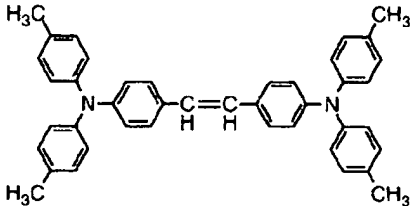
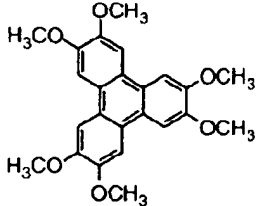
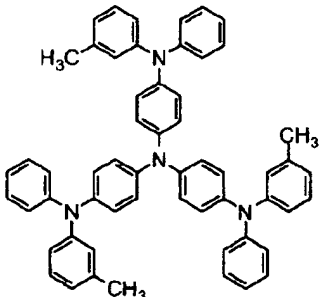
【0036】

[0036]

	化合物
A - 2 8	
A - 2 9	
A - 3 0	
A - 3 1	

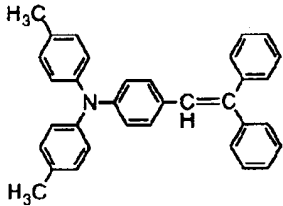
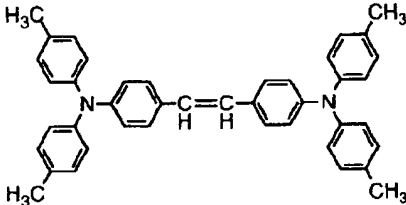
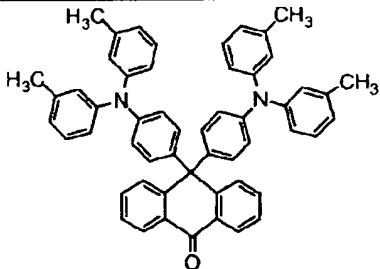
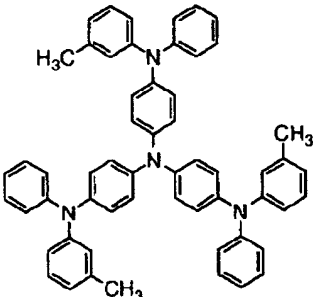
【0037】

[0037]

	化合物
A-32	
A-33	
A-34	
A-35	

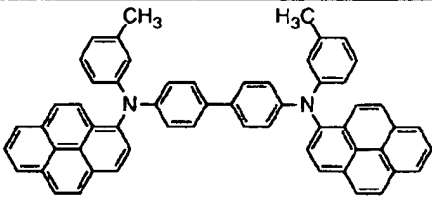
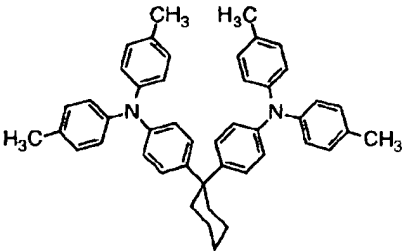
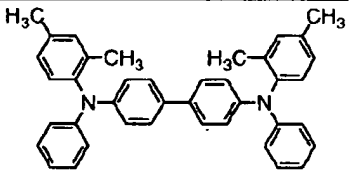
【0038】

[0038]

	化合物
A - 3 2	
A - 3 3	
A - 3 4	
A - 3 5	

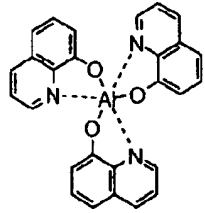
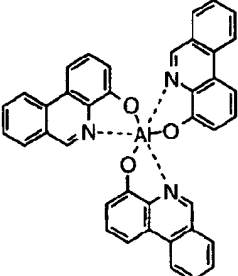
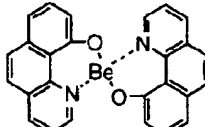
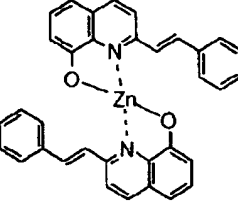
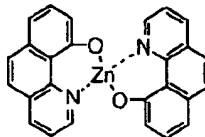
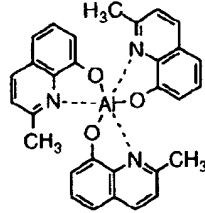
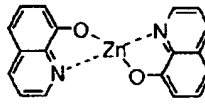
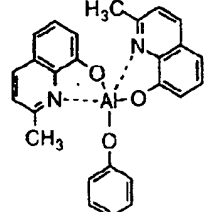
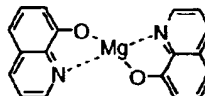
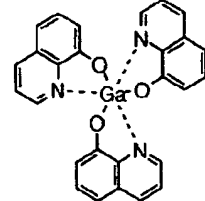
【0039】

【0039】

	化合物
A-36	銅フタロシアニン
A-37	銅ナフタロシアニン
A-38	塩化インジウムフタロシアニン
A-39	塩化アルミニウムフタロシアニン
A-40	ジクロロシリコンフタロシアニン
A-41	
A-42	
A-43	

【0040】

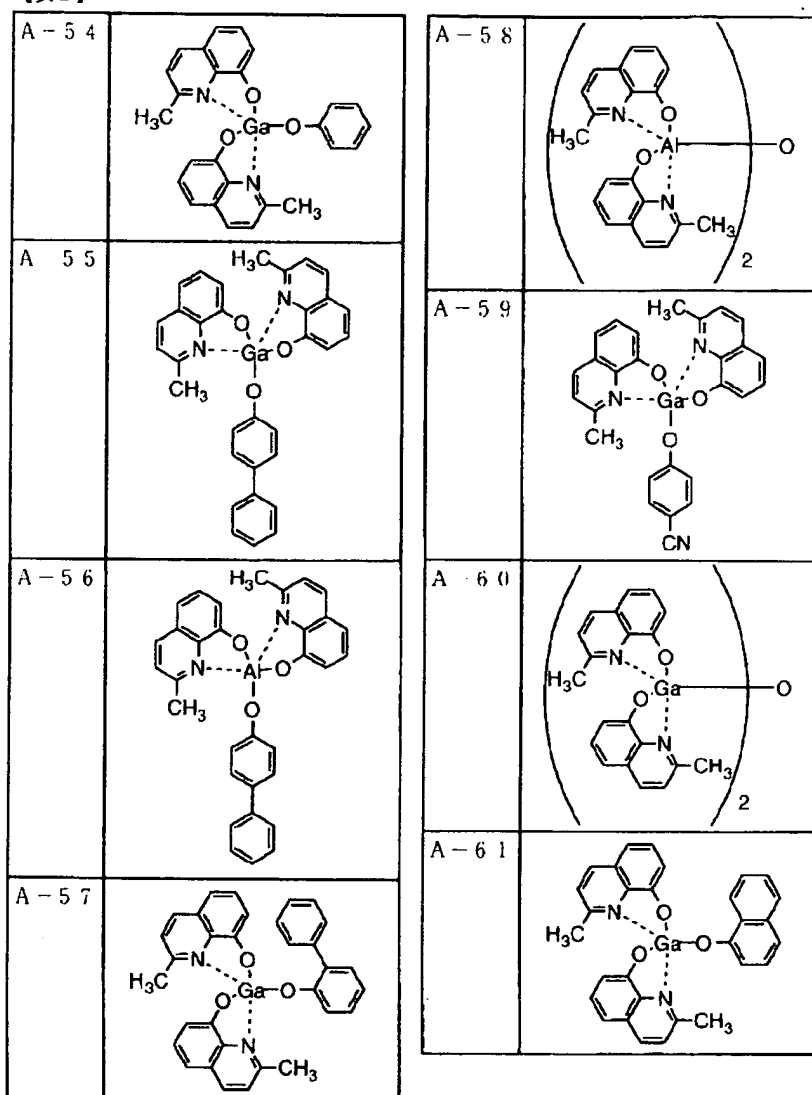
【0040】

A - 4 4		A - 5 0	
A - 4 5		A - 5 1	
A - 4 6		A - 5 2	
A - 4 7		A - 5 3	
A - 4 8			
A - 4 9			

[0041]

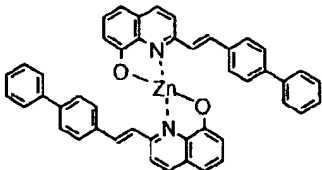
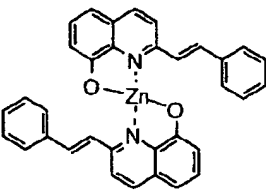
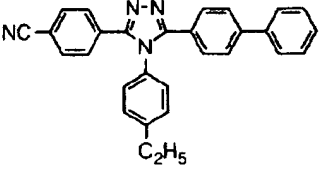
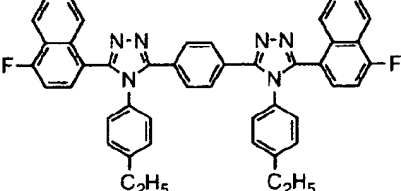
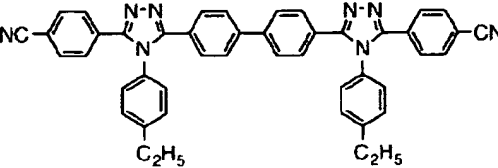
[0041]





【0042】

[0042]

A - 6 2	
A - 6 3	
A - 6 4	
A 6 5	
A - 6 6	

[0043]

[0043]

A-67	
A-68	
A-69	
A-70	
A-71	

[0044]

一般式[1]と共に更なるドーピング物質を使用して発光色を変化させることも可能となる。

一般式[1]と共に使用されるドーピング物質としては、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、テトラセン、コロネン、クリセン、フルオレセイン、ペリレン、フタロペリレン、ナフタロペリレン、ペリノン、フタロペリノン、ナフタロペリノン、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、クマリン、オキサジアゾール、アルダジン、ビスベンゾキサゾリン、ビススチリル、ピラジン、シクロペンタジエン、キノリン金属錯体、アミノキノリン金属錯体、イミン、ジフェニルエチレン、ビニルアントラセン、ジアミノカルバゾール、ピラン、チオピラン、ポリメチン、メロシアニン、イミダゾールキレート化オキシノイド化合物、キナクリドン、ルブレン等およびそれらの誘導体があるが、これらに限定されるものではない。

[0044]

With General Formula [1] using further doping substance, emission color also it becomes possible to change.

anthracene, naphthalene, phenanthrene, pyrene, tetracene, coronene, chrysene, fluorescein, perylene, phthaloperylene, naphthaloperylene, perinone, phthaloperinone, naphthaloperinone, biphenyl butadiene, tetra phenyl butadiene, coumarin, oxadiazole, aldazine, screw benzo キサゾ phosphorus and bisstyryl, pyrazine, cyclopentadien, quinoline metal complex, aminoquinoline metal complex, imine, biphenyl ethylene, vinyl anthracene, diamino carbazole, pyran, thiopyran, polymethine, merocyanine, imidazole chelating oxynoid compound, quinacridone, rubrene etc and there are those derivative, with General Formula [1] as doping substance which is used, but it is not something which is limited in these.

【0045】

正孔注入材料としては、正孔を注入する能力を持ち、発光層または発光材料に対して優れた正孔注入効果を有し、発光層で生成した励起子の電子注入層または電子注入材料への移動を防止し、かつ薄膜形成能の優れた化合物が挙げられる。

具体的には、フタロシアニン系化合物、ナフタロシアニン系化合物、ポルフィリン系化合物、オキサジアゾール、トリアゾール、イミダゾール、イミダゾロン、イミダゾールチオン、ピラゾリン、ピラゾロン、テトラヒドロイミダゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、ヒドラゾン、アシルヒドラゾン、ポリアリーールアルカン、スチルベン、ブタジエン、ベンジジン型トリフェニルアミン、スチリルアミン型トリフェニルアミン、ジアミン型トリフェニルアミン等と、それらの誘導体、およびポリビニルカルバゾール、ポリシラン、導電性高分子等の高分子材料等があるが、これらに限定されるものではない。

【0046】

電子注入材料としては、電子を注入する能力を持ち、発光層または発光材料に対して優れた電子注入効果を有し、発光層で生成した励起子の正孔注入層または正孔注入材料への移動を防止し、かつ薄膜形成能の優れた化合物が挙げられる。

例えば、フルオレノン、アントラキノジメタン、ジフェノキノン、チオピランジオキソド、オキサジアゾール、チアジアゾール、テトラゾール、ペリレンテトラカルボン酸、フレオレニリデンメタン、アントラキノジメタン、アントロン等とそれらの誘導体があるが、これらに限定されるものではない。

また、正孔注入材料に電子受容物質を、電子注入材料に電子供与性物質を添加して増感させることもできる。

【0047】

本発明の一般式[1]の化合物は、発光材料として、もしくはドーピング材料として発光層内での使用することが望ましく、発光材料、ドーピング材料、正孔注入材料および電子注入材料の少なくとも一種が同一層に含有されてもよい。

また、一般式[1]の化合物は、正孔輸送能力を持っているので、正孔注入層に使用することも

【0045】

As positive hole-injecting material, it possesses positive hole injection effect which is superior with the capacity which fills positive hole, vis-a-vis luminescent layer or light-emitting material it prevents electron-injecting layer of exciton which is formed with luminescent layer, or the movement to electron implantation material it can list compound where at same time thin film forming ability is superior.

Concretely, phthalocyanine type compound, naphthalocyanine compound, porphyrin compound, oxadiazole, triazole, imidazole, imidazolone, imidazole thione, pyrazoline, pyrazolone, tetrahydro imidazole, oxazole, oxadiazole, hydrazone, acyl hydrazone, poly aryl alkane, stilbene, butadiene, benzidine type triphenyl amine, styryl amine type triphenyl amine, diamine type triphenyl amine etc and, there are those derivative, and a poly vinyl carbazole, poly silane, conductive polymer or other polymeric material etc, but it is not something which is limited in these.

【0046】

As electron implantation material, it possesses electron injection effect which is superior with capacity which fills electron, vis-a-vis luminescent layer or light-emitting material it prevents positive hole-injecting layer of exciton which is formed with luminescent layer, or the movement to positive hole-injecting material it can list compound where at same time the thin film forming ability is superior.

for example fluorenone, anthraquinone G methane, diphenylquinone, thiopyran dioxide, oxadiazole, thiadiazole, tetrazole, perylene tetracarboxylic acid, fluorenylidene methane, anthraquinone G methane and anthrone etc there are those derivative, but it is not something which is limited in these.

In addition, electron reception substance, adding electron donating substance to electron implantation material in the positive hole-injecting material, sensitization it is possible also to do.

【0047】

Inside luminescent layer uses compound of General Formula [1] of this invention, as the light-emitting material, or as dopant to be desirable, at least one kind of light-emitting material, dopant, positive hole-injecting material and electron implantation material to same layer may be contained.

In addition, because compound of General Formula [1] has positive hole transport function power, it can also use for

出来る。

【0048】

本発明により得られた有機 EL 素子の、温度、湿度、雰囲気等に対する安定性の向上のために、素子の表面に保護層を設けたり、シリコンオイル等を封入して素子全体を保護することも可能である。

【0049】

【実施例】

positive hole-injecting layer.

【0048】

Also it is possible for improving stability for, temperature, humidity, atmosphere etc of the organic electroluminescent element which is acquired with this invention, to provide protective layer in the surface of element, to enclose silicon oil and etc to protect element entirety.

【0049】

[Working Example(s)]

#### 化合物(1)の合成方法

##### synthetic method of compound (1)

5、12- ナフトキノ 40g を n- ブチルエーテル中で 5 分間撹拌した。

その後 80 度 2 時間撹拌後、エバポレーションを行い得られた固体を、エーテル、アセトンで洗浄した。

得られた固体 9g と炭酸カリウム 5g を 150cc のエタノールに分散し 3 日間撹拌した。

3 日後、黄色い固体を濾過し集め、クロロホルムに溶解し溶解しない物質を濾過して取り除いた。

その後、クロロホルム溶液をエバポレーションし溶媒を取り除き 6、11- ビス(4- メチルフェニル)- 5、12- ナフタセンキノンを得た。

6、11- ビス(4- メチルフェニル)- 5、12- ナフタセンキノ 1.5g と 4- メチルフェニルリチウム 9.7g を 200cc エーテル中で環流し、13 時間反応を行った。

反応終了後、水を注ぎ、エーテル層を抽出した。

エーテル層を濃縮後、精製した沈殿をクロロホルムに溶解し、水蒸気蒸留をおこない、副生成物である、ビフェニルを取り除いた。

クロロホルムをエバポレーションにより取り除き、得られた固体をジオキサンに溶解し、そこにリグロインを注ぎ固体を析出させた。

得られた固体を n- プロピルアルコールで再結晶を行った。

得られた結晶 0.1g と鉄粉末 1g を酢酸 12.5cc に分散し、環流下、1 時間撹拌した。

その後、水を注ぎ、析出した固体を集め昇華精製した。

5 and 12 -naphthoquinone 40g 5 min were agitated in n-butyl ether.

After that 80 degrees 2 hours agitation later, evaporation was done and solid which is acquired, was washed with ether, acetone.

It dispersed solid 9g and potassium carbonate 5g which it acquires to ethanol of 150 cc and 3 -day period agitated.

3 days later, yellow it was and filtered solid and gathered, melted in chloroform and filtering substance which is not melted, it removed.

After that, chloroform solution evaporation was done and solvent was removed and 6 and 11 -screw (4 -methylphenyl) - 5 and 12 -naphthacene quinones were acquired.

6 and 11 -screw (4 -methylphenyl) - 5 and 12 -naphthacene quinones 1.5g and 4 -methylphenyl lithium 9.7 g rotary flow was done in 200 cc ether, 13 hours reactions were done.

After reaction termination, water was poured, ether layer was extracted.

ether layer after concentrating, precipitation which refined is melted in chloroform, steam distillation is done, it is a by-product, biphenyl was removed.

chloroform was removed due to evaporation, solid which is acquired was melted in dioxane, ligroin was poured there and solid was precipitated.

solid which it acquires recrystallization was done with n-propyl alcohol.

It dispersed crystal 0.1 g and iron powder 1 g which it acquires to acetic acid 12.5 cc, ring flowing down and 1 hour agitated.

After that, you poured water, you gathered solid which

JP1998289786A

1998-10-27

製し、化合物(1)を得た。

was precipitated and sublimation purification did, acquired compound (1).

元素分析、分子量分析、赤外吸収スペクトル、  
NMR スペクトルにより化合物(1)であることを確  
認した。

It is a compound (1) with elemental analysis, molecular  
weight analysis and infrared absorption spectrum, nmr  
spectrum, you verified.

元素分析結果						
elemental analysis result						
C46H36 として						
C46H36 doing						
計算値(%): C:93.84	H:6.16					
calculated value (%):C:93.84	H:6.16					
実測値(%): C:93.79	H:6.21					
actual measured value (%):C:93.79	H:6.21					
化合物(6)の合成方法						
synthetic method of compound (6)						

マグネシウムブロマイドに変え、4-メチルフェニ  
ルリチウムを 4-ビフェニルリチウムに変える以  
外は上記と同様な方法で合成を行った。

It changed into magnesium bromide, 4-methylphenyl other  
than 4-biphenyl changing the lithium into lithium, description  
above and it synthesized with same method.

元素分析、分子量分析、赤外吸収スペクトル、  
NMR スペクトルにより化合物(6)であることを確  
認した。

It is a compound (6) with elemental analysis, molecular  
weight analysis and infrared absorption spectrum, nmr  
spectrum, you verified.

元素分析結果

elemental analysis result

C66H44 として						
C66H44 doing						
計算値(%):	C:94	.	70	H:5.30		
calculated value (%):	C:94	.	70	H:5.30		
実測値(%)	C :94	.	42	H	:5.58	
actual measured value (%)	C :94	.	42	H	:5.58	

【0050】

【0050】

実施例 1

Working Example 1

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、 $N,N'$  —(3-メチルフェニル)— $N,N'$  —ジフェニル—1,1-ビフェニル-4,4-ジアミン(TPD)を真空蒸着して、膜厚 20nm の正孔注入層を得た。

次いで、化合物(1)を蒸着し膜厚 40nm の発光層を作成し、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム錯体を蒸着し、膜厚 30nm の電子注入層を得た。

その上に、マグネシウムと銀を 10:1 で混合した合金で膜厚 100nm の電極を形成して有機 EL 素子を得た。

正孔注入層および発光層は  $10^{-6}$ Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。

この素子は直流電圧 5V で発光輝度  $8\text{cd/m}^2$ 、最大発光輝度  $2500\text{cd/m}^2$ 、5V の時の発光効率  $1\text{lm/W}$  の発光が得られた。

次に  $3\text{mA/cm}^2$  の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の 1/2 以上の発光が 5000 時間以上保持された。

【0051】

#### 実施例 2

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に化合物(45)を真空蒸着して膜厚 100nm の発光層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を 10:1 で混合した合金で膜厚 150nm の膜厚の電極を形成して有機 EL 素子を得た。

発光層および陰極は、 $10^{-6}$ Torr の真空中で基板温度室温の条件下で蒸着した。

この素子は直流電圧 5V で発光輝度  $5\text{cd/m}^2$ 、最大発光輝度  $120\text{cd/m}^2$ 、5V の時の発光効率  $0.2\text{lm/W}$  の発光が得られた。

次に  $3\text{mA/cm}^2$  の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の 1/2 以上の発光が 5000 時間以上保持された。

【0052】

#### 実施例 3

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、化合物(26)を蒸着し膜厚 80nm の正孔注入層を作成

On ITO electrode-equipped glass sheet which you washed,  $N,N'$  — (3-methylphenyl) - $N,N'$  —biphenyl—1, 1- biphenyl-4, 4- diamine vacuum vapor deposition doing the(TPD ), it acquired positive hole-injecting layer of film thickness 20 nm.

Next, compound (1) vapor deposition was done and luminescent layer of film thickness 40 nm was drawn up, tris (8 -hydroxy quinoline ) aluminum complex vapor deposition was done, electron-injecting layer of the film thickness 30 nm was acquired.

On that, forming electrode of film thickness 100 nm with alloy which 10: mixes magnesium and silver at 1, it acquired organic electroluminescent element.

$10^{-6}$ Torr in vacuum, vapor deposition it did positive hole-injecting layer and luminescent layer under condition of substrate temperature room temperature.

light emitting of light emission efficiency  $1\text{lm/W}$  at time of light emitting brightness  $8\text{cd/m}^2$ 、 maximum light emitting brightness  $2500\text{cd/m}^2$ 、 5V acquired this element with direct current voltage 5V.

With current density of  $3\text{mA/cm}^2$ , continuing this element next, result of the lifetime test which light emitting is done, light emitting of 1/2 or more of initial luminance was kept 5,000 hour or more.

[0051]

#### Working Example 2

vacuum vapor deposition doing compound (45) on ITO electrode-equipped glass sheet which you washed it drew up luminescent layer of film thickness 100 nm, on that, it formed electrode of film thickness of film thickness 150 nm with alloy which 10: mixes magnesium and silver at 1 and acquired organic electroluminescent element.

$10^{-6}$ Torr in vacuum vapor deposition it did luminescent layer and cathode, under condition of substrate temperature room temperature.

light emitting of light emission efficiency  $0.2\text{lm/W}$  at time of light emitting brightness  $5\text{cd/m}^2$ 、 maximum light emitting brightness  $120\text{cd/m}^2$ 、 5V acquired this element with direct current voltage 5V.

With current density of  $3\text{mA/cm}^2$ , continuing this element next, result of the lifetime test which light emitting is done, light emitting of 1/2 or more of initial luminance was kept 5,000 hour or more.

[0052]

#### Working Example 3

On ITO electrode-equipped glass sheet which you washed, compound (26) vapor deposition was done and the positive

し、次いで、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム錯体を蒸着し、膜厚 20nm の発光層を得た。

その上に、マグネシウムと銀を 10:1 で混合した合金で膜厚 100nm の電極を形成して有機 EL 素子を得た。

正孔注入層および発光層は  $10^{-6}$ Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。

この素子は直流電圧 5V で発光輝度  $3\text{cd/m}^2$ 、最大発光輝度  $8000\text{cd/m}^2$ 、5V の時の発光効率  $0.8\text{lm/W}$  の発光が得られた。

次に  $3\text{mA/cm}^2$  の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の 1/2 以上の発光が 3000 時間以上保持された。

#### 【0053】

##### 実施例 4

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、 $\text{N,N}'$ —(4—メチルフェニル)— $\text{N,N}'$ —(4-n-ブチルフェニル)—フェナントレン—9,10—ジアミンと化合物 (12)とを 100:1 の重量比で蒸着して、膜厚 30nm の正孔注入層を得た。

次いで、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム錯体を真空蒸着して膜厚 50nm の発光層を得た。

その上に、マグネシウムと銀を 10:1 で混合した合金で膜厚 150nm の電極を形成して有機 EL 素子を得た。

正孔注入層および陰極は、 $10^{-6}$ Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。

この素子は直流電圧 5V で発光輝度  $150\text{cd/m}^2$ 、最大発光輝度  $18000\text{cd/m}^2$ 、5V の時の発光効率  $1.3\text{lm/W}$  の発光が得られた。

次に  $3\text{mA/cm}^2$  の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の 1/2 以上の発光が 100 時間以上保持された。

#### 【0054】

##### 実施例 5

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、 $\text{N,N}'$ -ジフ

hole-injecting layer of film thickness 80 nm was drawn up. next, tris (8 -hydroxy quinoline ) aluminum complex vapor deposition was done, luminescent layer of film thickness 20 nm was acquired.

On that, forming electrode of film thickness 100 nm with alloy which 10: mixes magnesium and silver at 1, it acquired organic electroluminescent element.

$10^{-6}$ Torr in vacuum, vapor deposition it did positive hole-injecting layer and luminescent layer under condition of substrate temperature room temperature.

light emitting of light emission efficiency  $0.8\text{lm/W}$  at time of light emitting brightness  $3\text{cd/m}^2$ 、maximum light emitting brightness  $8000\text{cd/m}^2$ 、5V acquired this element with direct current voltage 5V.

With current density of  $3\text{mA/cm}^2$ , continuing this element next, result of the lifetime test which light emitting is done, light emitting of 1/2 or more of initial luminance was kept 3,000 hour or more.

#### [0053]

##### Working Example 4

On ITO electrode-equipped glass sheet which you washed,  $\text{N,N}'$ —(4 -methylphenyl ) - $\text{N,N}'$ —(4 -n- butyl phenyl ) 100: vapor deposition doing -phenanthrene—9,10—diamine and compound (12) with weight ratio of 1, it acquired the positive hole-injecting layer of film thickness 30 nm.

Next, vacuum vapor deposition doing tris (8 -hydroxy quinoline ) aluminum complex, it acquired luminescent layer of the film thickness 50 nm.

On that, forming electrode of film thickness 150 nm with alloy which 10: mixes magnesium and silver at 1, it acquired organic electroluminescent element.

$10^{-6}$ Torr in vacuum, vapor deposition it did positive hole-injecting layer and cathode, under condition of substrate temperature room temperature.

light emitting of light emission efficiency  $1.3\text{lm/W}$  at time of light emitting brightness  $150\text{cd/m}^2$ 、maximum light emitting brightness  $18000\text{cd/m}^2$ 、5V acquired this element with direct current voltage 5V.

With current density of  $3\text{mA/cm}^2$ , continuing this element next, result of the lifetime test which light emitting is done, light emitting of 1/2 or more of initial luminance was kept 100 hour or more.

#### [0054]

##### Working Example 5

On ITO electrode-equipped glass sheet which you washed, N,



エニル-N,N'-(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミンを真空蒸着して、膜厚 20nm の正孔注入層を得た。

次いで、N,N'-(4-メチルフェニル)-N,N'-(4-n-ブチルフェニル)-フェナントレン-9,10-ジアミンと化合物(1)とを 100:1 の重量比で蒸着し膜厚 40nm の発光層を作成し、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム錯体を蒸着し、膜厚 10nm の電子注入層を得た。

その上に、マグネシウムと銀を 10:1 で混合した合金で膜厚 100nm の電極を形成して有機 EL 素子を得た。

正孔注入層および発光層は  $10^{-6}$  Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。

この素子は直流電圧 5V で発光輝度  $250\text{cd/m}^2$ 、最大発光輝度  $60000\text{cd/m}^2$ 、5V の時の発光効率  $8.0\text{lm/W}$  の発光が得られた。

次に  $3\text{mA/cm}^2$  の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の 1/2 以上の発光が 10000 時間以上保持された。

【0055】

実施例 6~14

発光層に、化合物(1)に換え、表 3 で示した化合物を使用する以外は実施例 5 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。

この素子は表 3 に示す発光特性を示した。

【0056】

【表 3】

N,N'-biphenyl-N,N'-(3-methylphenyl)-vacuum vapor deposition doing 1 and 1'-biphenyl-4,4'-diamine, it acquired positive hole-injecting layer of film thickness 20 nm.

Next, N,N'-(4-methylphenyl)-N,N'-(4-n-butylphenyl)-phenanthrene-9,10-diamine and compound (1) 100: with the weight ratio of 1 vapor deposition was done and luminescent layer of film thickness 40 nm was drawn up, tris (8-hydroxy quinoline) aluminum complex vapor deposition was done, electron-injecting layer of film thickness 10 nm was acquired.

On that, forming electrode of film thickness 100 nm with alloy which 10: mixes magnesium and silver at 1, it acquired organic electroluminescent element.

$10^{-6}$  Torr in vacuum, vapor deposition it did positive hole-injecting layer and luminescent layer under condition of substrate temperature room temperature.

light emitting of light emission efficiency  $8.0\text{lm/W}$  at time of light emitting brightness  $250\text{cd/m}^2$ 、maximum light emitting brightness  $60000\text{cd/m}^2$ 、5V acquired this element with direct current voltage 5V.

With current density of  $3\text{mA/cm}^2$ , continuing this element next, result of the lifetime test which light emitting is done, light emitting of 1/2 or more of initial luminance was kept 10,000 hour or more.

【0055】

Working Example 6~14

In luminescent layer, it changed into compound (1), other than using compound which is shown with Table 3 it produced organic electroluminescent element with method which is similar to Working Example 5.

This element showed light emitting quality which is shown in Table 3.

【0056】

[Table 3]

実施例	化合物	5 V 発光輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )	最大発光輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )	最大発光効率 ( $\text{lm}/\text{W}$ )
6	(2)	280	63000	7.4
7	(6)	240	59000	7.5
8	(7)	320	65000	7.7
9	(9)	230	58000	6.4
10	(12)	260	57000	7.0
11	(15)	310	66000	7.1
12	(19)	300	63000	6.2
13	(23)	310	64000	7.6
14	(26)	290	61000	7.1

## 【0057】

## 比較例 1

実施例 5 の化合物(1)から 5,6,11,12- テトラフェニルナフタセン(ルブレン)に変える以外は実施例 6~14 と同様の方法で有機 EL 素子を作製して発光輝度を測定した。

この素子は直流電圧 5V で発光輝度  $50\text{cd}/\text{m}^2$ 、最大発光輝度  $25000\text{cd}/\text{m}^2$ 、5V の時の発光効率  $2.0\text{lm}/\text{W}$  の発光しか得られなかった。

次に  $3\text{mA}/\text{cm}^2$  の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の 1/2 以上の発光が 3000 時間しか保持されなかった。

## 【0058】

## 実施例 15

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、 $\text{N,N}'$ —(4-メチルフェニル)— $\text{N,N}'$ —(4-n-ブチルフェニル)—フェナントレン—9,10—ジアミンを真空蒸着して、膜厚 30nm の正孔注入層を得た。

次いで、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム錯体と化合物(18)とを 5:1 の重量比で蒸着して、の膜厚 30nm の発光層を作成し、さらに真空蒸着法により[2-(4-tert-ブチルフェニル)-5-(ビフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール]の膜厚 20nm の電子注入層を得た。

その上に、マグネシウムと銀を 10:1 で混合した合金で膜厚 150nm の電極を形成して有機 EL 素

## 【0057】

## Comparative Example 1

5, 6, 11 and 12 -tetra phenyl naphthacene other than changing into (rubrene), producing the organic electroluminescent element with method which is similar to Working Example 6~14, it measured the light emitting brightness from compound (1) of Working Example 5.

Only light emitting of light emission efficiency  $2.0\text{lm}/\text{W}$  at time of light emitting brightness  $50\text{cd}/\text{m}^2$ 、maximum light emitting brightness  $25000\text{cd}/\text{m}^2$ 、5V it could acquire this element with direct current voltage 5V.

With current density of  $3\text{mA}/\text{cm}^2$ , continuing this element next, result of the lifetime test which light emitting is done, light emitting of 1/2 or more of initial luminance kept only 3,000 hour.

## 【0058】

## Working Example 15

On ITO electrode-equipped glass sheet which you washed,  $\text{N,N}'$ —(4-methylphenyl)— $\text{N,N}'$ —(4-n-butyl phenyl) vacuum vapor deposition doing-phenanthrene—9,10—diamine, it acquired positive hole-injecting layer of film thickness 30 nm.

Next, 5: vapor deposition doing tris (8-hydroxy quinoline) aluminum complex and compound (18) with the weight ratio of 1, it drew up luminescent layer of film thickness 30 nm, it acquired electron-injecting layer of film thickness 20 nm of [2-(4-t-butyl phenyl)-5-(biphenyl)-1,3 and 4-oxadiazole] furthermore with vacuum vapor deposition method.

On that, forming electrode of film thickness 150 nm with alloy which 10: mixes magnesium and silver at 1, it acquired

子を得た。

正孔注入層、発光層、電子注入層および陰極は、 $10^{-6}$ Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。

この素子は直流電圧 5V で発光輝度  $350\text{cd/m}^2$ 、最大発光輝度  $58000\text{cd/m}^2$ 、5V の時の発光効率  $5.3\text{lm/W}$  の発光が得られた。

次に  $3\text{mA/cm}^2$  の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の 1/2 以上の発光が 10000 時間以上保持された。

【0059】

実施例 16~24

発光層に、実施例 15 の化合物(18)に換え、表 4 で示した化合物を使用する以外は実施例 15 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。

この素子は表 4 に示す発光特性を示した。

【0060】

【表 4】

実施例	化合物	5 V 発光輝度 ( $\text{cd/m}^2$ )	最大発光輝度 ( $\text{cd/m}^2$ )	最大発光効率 ( $\text{lm/W}$ )
16	(6)	210	66000	7.0
17	(11)	330	73000	7.1
18	(13)	300	64000	6.2
19	(14)	320	58000	5.1
20	(17)	260	54000	6.4
21	(20)	210	66000	7.5
22	(21)	240	58000	6.7
23	(22)	280	62000	6.4
24	(25)	290	53000	5.7

【0061】

実施例 25

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、4、4'、4"-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミンを真空蒸着して、膜厚 40nm の正孔注入層を得た。

organic electroluminescent element.

$10^{-6}$ Torr in vacuum, vapor deposition it did positive hole-injecting layer, luminescent layer, electron-injecting layer and cathode, under condition of substrate temperature room temperature.

light emitting of light emission efficiency  $5.3\text{lm/W}$  at time of light emitting brightness  $350\text{cd/m}^2$ 、maximum light emitting brightness  $58000\text{cd/m}^2$ 、5V acquired this element with direct current voltage 5V.

With current density of  $3\text{mA/cm}^2$ , continuing this element next, result of the lifetime test which light emitting is done, light emitting of 1/2 or more of initial luminance was kept 10,000 hour or more.

[0059]

Working Example 16~24

In luminescent layer, it changed into compound (18) of Working Example 15, other than using compound which is shown with Table 4 it produced organic electroluminescent element with method which is similar to Working Example 15.

This element showed light emitting quality which is shown in Table 4.

[0060]

[Table 4]

[0061]

Working Example 25

On ITO electrode-equipped glass sheet which you washed, vacuum vapor deposition doing 4 and 4'、4"-tris [N- (3 -methylphenyl) -N- phenylamino ] triphenyl amine, it acquired positive hole-injecting layer of

正孔注入層を得た。

次いで、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニルを真空蒸着して、膜厚 10nm の第二正孔注入層を得た。

さらに、ホスト化合物としての 9,9-ビス(N,N-ビス(3-トリル)-4-アミノフェニル)フルオレンとドーピング化合物としての化合物(1)とを 100:1 の重量比で蒸着して、膜厚 30nm の発光層を作成し、さらにビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナト)(1-フェノラート)ガリウム錯体を真空蒸着して膜厚 30nm の電子注入層を作成し、その上に、アルミニウムとリチウムを 25:1 で混合した合金で膜厚 150nm の電極を形成して、有機 EL 素子を得た。

正孔注入層および発光層は  $10^{-6}$  Torr の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。

この素子は、直流電圧 5V で発光輝度  $260(\text{cd}/\text{m}^2)$ 、最大発光輝度  $70000(\text{cd}/\text{m}^2)$ 、発光効率  $7.8(\text{lm}/\text{W})$  の発光特性が得られた。

【0062】

実施例 26~37

発光層に、ホスト化合物とドーピング化合物として表 5 で示した化合物を使用する以外は実施例 5 と同様の方法で有機 EL 素子を作製した。

この素子は表 5 に示す発光特性を示した。

【0063】

【表 5】

film thickness 40 nm.

Next, vacuum vapor deposition doing 4 and 4'-screw [N- (1 -naphthyl ) -N- phenylamino ] biphenyl, it acquired second positive hole-injecting layer of film thickness 10 nm.

Furthermore, as host compound 100: vapor deposition doing compound (1) 9 and 9-screw as (N, N- screw (3 -tolyl ) - 4 -amino phenyl ) fluorene and doping compound with weight ratio of 1, to draw up luminescent layer of film thickness 30 nm, furthermore vacuum vapor deposition doing screw (2 -methyl-8-hydroxy quinolinato ) (1 -phenolate ) gallium complex and to draw up electron-injecting layer of film thickness 30 nm, on that, aluminum and lithium 25: Forming electrode of film thickness 150 nm with alloy which is mixed at 1, itacquired organic electroluminescent element.

$10^{-6}$  Torr in vacuum, vapor deposition it did positive hole-injecting layer and luminescent layer under condition of substrate temperature room temperature.

light emitting brightness  $260(\text{cd}/\text{m}^2)$ , maximum light emitting brightness  $70000(\text{cd}/\text{m}^2)$ , light emitting quality of light emission efficiency  $7.8(\text{lm}/\text{W})$  acquired this element, with direct current voltage 5V.

【0062】

Working Example 2 6~37

In luminescent layer, other than using compound which is shown with Table 5 as host compound and doping compound organic electroluminescent element was produced with method which is similar to Working Example 5.

This element showed light emitting quality which is shown in Table 5.

【0063】

【Table 5】

実施例	ホスト 化合物	ドーピング 化合物	5 V 発光輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )	最大発光輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )	最大発光効率 ( $\text{lm}/\text{W}$ )
26	A-2	(3)	210	57000	6.7
27	A-8	(5)	200	56000	6.4
28	A-12	(8)	210	64000	7.0
29	A-20	(10)	230	58000	5.1
30	A-24	(14)	260	57000	6.4
31	A-34	(16)	210	66000	7.5
32	A-44	(18)	240	58000	6.7
33	A-50	(19)	220	62000	6.4
34	A-51	(24)	290	53000	5.7
35	A-56	(3)	240	52000	5.8
36	A-63	(8)	190	49000	4.9
37	A-66	(11)	270	58000	5.7

## 【0064】

## 実施例 38

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、N,N' —(4-メチルフェニル)—N,N' —(4-n-ブチルフェニル)—フェナントレン—9,10—ジアミンをクロロホルムに溶解し、スピコーティング法により膜厚 30nm の正孔注入層を得た。

次いで、化合物(21)を蒸着し膜厚 40nm の発光層を作成し、さらにビス(2-メチル-8-ヒドロキシキノリナト)(1-フェノラート)ガリウム錯体を真空蒸着して膜厚 30nm の電子注入層を得た。

その上に、マグネシウムと銀を 10:1 で混合した合金で膜厚 100nm の電極を形成して有機 EL 素子を得た。

発光層および電子注入層は実施例 1 と同様な条件下で蒸着した。

この素子は直流電圧 5V で発光輝度  $90\text{cd}/\text{m}^2$ 、最大発光輝度  $20000\text{cd}/\text{m}^2$ 、5V の時の発光効率  $2.8\text{lm}/\text{W}$  の発光が得られた。

次に  $3\text{mA}/\text{cm}^2$  の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の 1/2 以上の発光が 5000 時間以上保持された。

## 【0065】

## 【0064】

## Working Example 38

On ITO electrode-equipped glass sheet which you washed, N,N' —(4-methylphenyl)—N,N' —(4-n-butyl phenyl)—phenanthrene—9,10—diamine was melted in chloroform, positive hole-injecting layer of film thickness 30 nm was acquired with the spin coating method.

Next, compound (21) vapor deposition was done and luminescent layer of film thickness 40 nm was drawn up, furthermore screw (2-methyl-8-hydroxy quinolinato) (1-phenolate) gallium complex vacuum vapor deposition was done and the electron-injecting layer of film thickness 30 nm was acquired.

On that, forming electrode of film thickness 100 nm with alloy which 10: mixes magnesium and silver at 1, it acquired organic electroluminescent element.

vapor deposition it did luminescent layer and electron-injecting layer under condition which is similar to Working Example 1.

light emitting of light emission efficiency  $2.8\text{lm}/\text{W}$  at time of light emitting brightness  $90\text{cd}/\text{m}^2$ 、maximum light emitting brightness  $20000\text{cd}/\text{m}^2$ 、5V acquired this element with direct current voltage 5V.

With current density of  $3\text{mA}/\text{cm}^2$ , continuing this element next, result of the lifetime test which light emitting is done, light emitting of 1/2 or more of initial luminance was kept 5,000 hour or more.

## 【0065】

## 実施例 39

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、化合物 (14)、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム錯体、TPD、ポリカーボネート樹脂(PC-A)を 3:2:3:8 の重量比でテトラヒドロフランに溶解させ、スピンコーティング法により膜厚 100nm の発光層を得た。

その上に、マグネシウムと銀を 10:1 で混合した合金で膜厚 150nm の電極を形成し有機 EL 素子を得た。

この素子は直流電圧 5V で発光輝度  $10\text{cd/m}^2$ 、最大発光輝度  $2000\text{cd/m}^2$ 、5V の時の発光効率  $0.8\text{lm/W}$  の発光が得られた。

次に  $3\text{mA/cm}^2$  の電流密度で、この素子を連続して発光させた寿命試験の結果、初期輝度の 1/2 以上の発光が 3000 時間以上保持された。

【0066】

## 実施例 40

洗浄した ITO 電極付きガラス板上に、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニルを真空蒸着して、膜厚 40nm の正孔注入層を得た。

さらに、N,N,N',N'-[4-( $\alpha$ ,  $\alpha'$ -ジメチルベンジル)フェニル]-アントラニル-9,10-ジアミンと化合物(14)を真空蒸着して膜厚 50nm の発光層を作成し、さらにトリス(8-ヒドロキシキノリナト)アルミニウム錯体を真空蒸着して膜厚 40nm の電子注入層を作成し、その上に、マグネシウムと銀を 10:1 で混合した合金で膜厚 150nm の電極を形成して、有機 EL 素子を得た。

正孔注入層および発光層は  $10^{-6}\text{Torr}$  の真空中で、基板温度室温の条件下で蒸着した。

この素子は、直流電圧 5V で発光輝度  $1200(\text{cd/m}^2)$ 、最大発光輝度  $69000(\text{cd/m}^2)$ 、発光効率  $5.2(\text{lm/W})$  の発光特性が得られた。

【0067】

本発明の有機 EL 素子は発光効率、発光輝度の向上と長寿命化を達成するものであり、併せて使用される発光物質、ドーピング材料、正孔輸送材料、電子輸送材料、増感剤、樹脂、電極材料等および素子作製方法を限定するものではない。

## Working Example 39

On ITO electrode-equipped glass sheet which you washed, compound (14), 3: 2: 3: melting the tris (8 -hydroxy quinoline ) aluminum complex、 TPD、 polycarbonate resin (PC-A ) in tetrahydrofuran with weight ratio of 8, it acquired the luminescent layer of film thickness 100 nm with spin coating method .

On that, electrode of film thickness 150 nm was formed with alloy which 10:mixes magnesium and silver at 1 and organic electroluminescent element was acquired.

light emitting of light emission efficiency  $0.8\text{lm/W}$  at time of light emitting brightness  $10\text{cd/m}^2$ 、 maximum light emitting brightness  $2000\text{cd/m}^2$ 、 5V acquired this element with direct current voltage 5V.

With current density of  $3\text{mA/cm}^2$ , continuing this element next, result of the lifetime test which light emitting is done, light emitting of 1/2 or more of initial luminance was kept 3,000 hour or more.

【0066】

## Working Example 40

On ITO electrode-equipped glass sheet which you washed, vacuum vapor deposition doing 4 and 4'-screw [N- (1 -naphthyl ) -N- phenylamino ] biphenyl, it acquired positive hole-injecting layer of film thickness 40 nm.

Furthermore, N,N,N',N'-[4-( $\alpha$ ,  $\alpha'$ -dimethyl benzyl) phenyl ] vacuum vapor deposition doing -anthranyl-9,10-diamine and compound (14), it drew up luminescent layer of film thickness 50 nm, furthermore vacuum vapor deposition did tris (8 -hydroxy quinolinato ) aluminum complex and drew up electron-injecting layer of film thickness 40 nm, on that, it formed electrode of film thickness 150 nm with alloy which 10: mixes magnesium and silver at 1, acquired organic electroluminescent element.

$10^{-6}\text{Torr}$  in vacuum, vapor deposition it did positive hole-injecting layer and luminescent layer under condition of substrate temperature room temperature.

light emitting brightness  $1200(\text{cd/m}^2)$ , maximum light emitting brightness  $69000(\text{cd/m}^2)$ , light emitting quality of light emission efficiency  $5.2(\text{lm/W})$  acquired this element, with direct current voltage 5V.

【0067】

organic electroluminescent element of this invention being something which achieves improvement and long lifetime of light emission efficiency、 light emitting brightness, light emitting substance、 dopant、 positive hole transporting material、 electron-transporting material、 sensitizer、 resin、 electrode material etc which is used together or is not

**JP1998289786A**

**1998-10-27**

はない。

something which limits element construction method.

**【発明の効果】**

**[Effects of the Invention]**

本発明により、従来に比べて高発光効率、高輝度であり、長寿命の有機 EL 素子を得ることができた。

With high light emission efficiency、high brightness , organic electroluminescent element of long life could be acquired with the this invention , in comparison with past.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



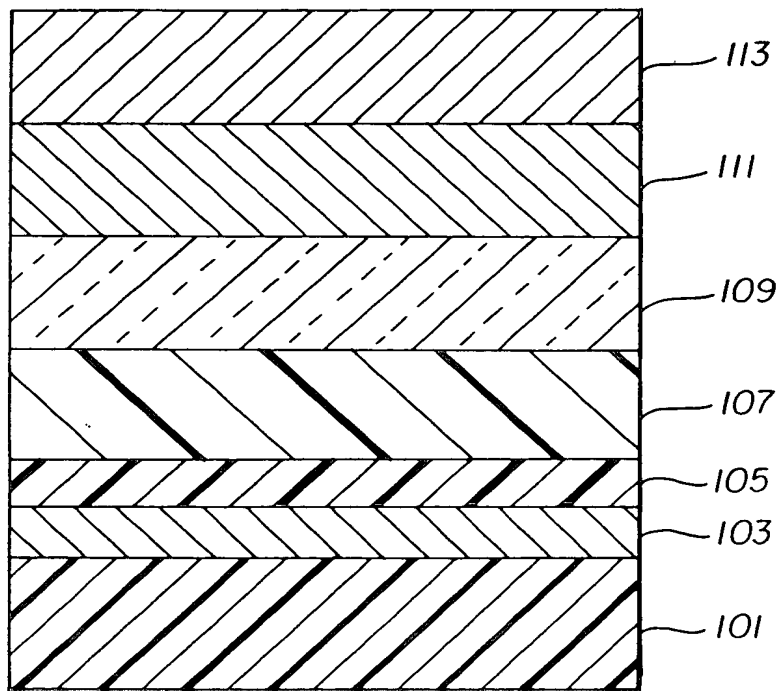


FIG. 1

THIS PAGE BLANK (33710)